

TESIS CARRERA DE DOCTORADO EN FÍSICA

**DINÁMICA DE VÓRTICES EN REDES DE CENTROS
DE ANCLAJE DESORDENADAS**

M.Sc. Ana Carolina Sarmiento Chavez
Doctorando

Dr. Julio Guimpel
Director

Miembros del Jurado

Dr. Daniel Dominguez (Instituto Balseiro)

Dr. Roberto Zysler (Instituto Balseiro)

Dra. Moira Dolz (Univ. Nac. de San Luis)

9 de Diciembre de 2019

División de Bajas Temperaturas – Centro Atómico Bariloche

Instituto Balseiro
Universidad Nacional de Cuyo
Comisión Nacional de Energía Atómica
Argentina

A Jesús

A mis padres

A mi familia

A mis amigos

Índice de contenidos

Índice de contenidos	v
Índice de figuras	ix
Índice de tablas	xiii
Resumen	xv
Abstract	xix
1. Introducción	1
1.1. Redes de defectos desordenados	1
1.2. Superredes de Nb/B para detección de neutrones	3
1.3. Nociones de superconductividad	5
1.4. Longitudes características y energía de pared	5
1.5. Campos de Nucleación	7
1.6. Superconductores tipo II: Los vórtices	8
1.6.1. Anclaje de vórtices	10
1.6.2. Mecanismos de Anclaje	10
1.6.3. Anclaje por redes periódicas	11
1.7. Estado crítico y estimación de corriente crítica	12
1.8. Niobio	14
2. Técnicas experimentales	15
2.1. Crecimiento de muestras	15
2.1.1. Técnica de Sputtering	15
2.1.2. Fabricación de películas delgadas de Nb y superredes de Nb/B .	17
2.2. Caracterización estructural	18
2.2.1. Difracción de rayos X	19
2.2.2. Microscopia electrónica de barrido	22
2.2.3. Microscopia electrónica de transmisión	22
2.2.4. Microscopio de fuerza atómica	24

2.2.5.	Mediciones de transporte eléctrico	25
2.2.6.	Mediciones magnéticas	29
3.	Efecto del desorden en la red de centros de anclaje sobre las características de la red de vórtices superconductores	31
3.1.	Fabricación de muestras	32
3.2.	Visualización de membrana porosa	33
3.3.	Depósito de la película superconductora	35
3.3.1.	Determinación de T_c	35
3.3.2.	Magnetización en función del campo	36
3.3.3.	Efecto Little-Parks	38
3.4.	Caracterización de las membranas porosas	40
3.4.1.	Número de primeros vecinos	41
3.4.2.	Diámetro, densidad de poro, parámetro de red de la red de defectos y tamaño de grano	43
3.4.3.	Análisis de la función de distribución de pares y función de correlación orientacional de la estructura de poros	44
3.5.	Resumen de la caracterización de membranas porosas	49
3.6.	Relación entre las características de las membranas porosas y las propiedades superconductoras de la película de Nb crecida sobre estas . . .	50
3.6.1.	Cálculo del campo de conmensuración	50
3.6.2.	Efectos de desorden de la red de poros sobre el anclaje de vórtices	52
3.6.3.	Efectos de temperatura en la fuerza de anclaje	54
3.7.	Relajación magnética o “creep” de flujo magnético	55
3.7.1.	Otra forma de calcular la energía de Barrera	61
3.8.	Conclusiones	64
4.	Superredes de Nb/B para su posible uso como detector de neutrones	67
4.1.	Introducción	67
4.2.	Superredes	68
4.3.	Fabricación de superredes	68
4.4.	Estructura cristalina de películas delgadas de Nb y superredes Nb/B .	69
4.4.1.	Difracción de rayos X de alto ángulo	71
4.4.2.	Difracción de rayos X de bajo ángulo	74
4.4.3.	TEM	79
4.5.	Propiedades superconductoras	80
4.5.1.	Campos críticos	83
4.5.2.	Corrientes críticas	84
4.6.	Irradiación de las superredes	86

4.7. Conclusiones	88
5. Conclusiones	91
A. Fabricación y transferencia de membrana porosa AAO	95
Bibliografía	99
Publicación asociada al trabajo de doctorado	105
Agradecimientos	107

Índice de figuras

1.1. Diagrama de fase de superconductores tipo I (a) y tipo II (b).	6
1.2. Diagrama esquemático de la variación de H y ψ en la interfase normal-superconductor	7
1.3. Esquema de un vórtice	9
1.4. Distribución de flujo y correspondiente distribución de corriente de acuerdo al modelo de Bean cuando se varía el campo	12
1.5. Esquema de magnetización en función del campo en un superconductor tipo II con anclaje	13
2.1. Esquema de proceso de sputtering	16
2.2. Definición de la configuración de Bragg y los grados de libertad en el difractor PANalytical Empyrean	19
2.3. Representación esquemática de la ley de Bragg	20
2.4. Representación esquemática de mediciones típicas de XRR y XRD en películas delgadas. a) Barrido ω , b) XRR de una película delgada poco rugosa y c) patrón de difracción de una película delgada monocristalina.	21
2.5. Foto del microscopio SEM Zeiss Crossbeam 340 utilizado para observar la topografía de las muestras.	23
2.6. AFM	24
2.7. Esquema de la configuración de contactos eléctricos empleada para las mediciones de transporte.	25
2.8. Pasos a seguir en la preparación de una película delgada mediante litografía electrónica.	26
2.9. Vista superior del equipo utilizado para medir transporte	27
2.10. Curva típica obtenida en la alineación de la muestra con el campo magnético.	28
3.1. Diagrama esquemático de la fabricación de membrana porosa.	32
3.2. Imágenes SEM de la superficie de membranas porosas crecidas sobre Si antes del depósito de Nb.	34

3.3. Evolución del momento magnético en función de temperatura de película de Nb crecida sobre la membrana porosa M240min	36
3.4. Propiedades magnéticas de las películas de Nb crecidas sobre las membranas porosas con distinto grado de desorden.	37
3.5. Gráficos de T_c en función del campo de las muestras M6min, M60min y M480min con el fin de observar el efecto Little-Parks	39
3.6. Imágenes SEM de vista superior de la muestra M240min, antes y después del depósito de Nb	40
3.7. Análisis del número de primeros vecinos de las membranas porosas. . .	42
3.8. Función de distribución de pares, $g(r)$, de una estructura cristalina con simetría hexagonal	45
3.9. Función de distribución de pares de las redes de poros.	46
3.10. Función de correlación orientacional de todas las muestras.	48
3.11. Decaimiento de la función correlación orientacional de la muestra M60min (panel izquierdo) y de la muestra M240min (panel derecho)	49
3.12. Arreglo hexagonal con las posiciones de los mínimos de potencial generados por los vórtices atrapados en los poros. Figura tomada de [1]. . .	52
3.13. Comparación de los $M(H)$ de tres de las seis muestras.	53
3.14. Distancia de orden longitudinal y de orden orientacional obtenida a partir de la función de distribución de pares y función de correlación orientacional graficada en función del número de picos de conmensuración observado en los gráficos de $M(H)$	53
3.15. Panel izquierdo: M vs. H a distintas temperaturas de la muestra M240min. Panel derecho: densidad de corriente crítica, J_c al primer campo de conmensuración ($H=2200$ Oe) de la muestra M30min y M240min.	54
3.16. Secuencia para medir relajación magnética	58
3.17. Gráfico de magnetización en función del tiempo	59
3.18. Medidas de magnetización y energía de anclaje U_p en función del campo de todas las muestras	60
3.19. Energía de anclaje (U_p) en función de la distancia de orden longitudinal. Se observa que hay una correlación no monótona entre la energía de anclaje U_p y el grado de orden de la red de defectos.	61
3.20. Esquema de la diferencia de altura (L) de la película de Nb crecida sobre la membrana porosa	62
3.21. Imagen y barrido mediante AFM de la superficie de la película de Nb depositada sobre una membrana porosa.	63
4.1. Esquema de una superred perfecta	70

4.2. Difractograma de rayos X de alto ángulo del sustrato, película de Nb y superred.	72
4.3. Difractograma de rayos X de alto ángulo con un acercamiento en: a) pico del Nb $2\theta = 38,5^\circ$ y b) pico del Si $2\theta = 69,2^\circ$ de una película de Nb y las superredes $(Nb_{20}/B_5)_{\times 4}$ y $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$	73
4.4. Curvas de reflectometría de rayos X de las superredes.	75
4.5. Difractograma de rayos X de bajo ángulo correspondiente a la muestra $(Nb_5/B_5)_{\times 10}$	76
4.6. Determinación gráfica del espesor total de la muestra (figura a) y del período de la superred (figura b) a partir de las franjas de Kiessig. . . .	77
4.7. Perfil de reflectividad de RX y ajuste de medición mediante el Parrat32	78
4.8. Micrografías TEM en campo claro y difracción de anillos	79
4.9. Micrografías TEM en campo oscuro de las superredes $(Nb_{20}/B_5)_{\times 4}$ y $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$	80
4.10. Dependencia de la temperatura de transición superconductora (T_c) con el espesor de la capa de Nb, d_{Nb} , para películas de Nb y superredes Nb/B. .	82
4.11. Medidas de resistividad en función de la temperatura de la muestra $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$ con un campo $H = 1, 3, 5, 7$ y 9 kOe aplicado perpendicular a) y paralelo b) a la superficie. c) Dependencia de la temperatura reducida $t = T/T_c$ ($H=0$) con el campo crítico.	84
4.12. Voltaje Vs densidad de corriente medido en la muestra $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$ a $T=4K$ variando el campo desde $0-10$ kOe con un paso de $0,5kOe$ entre $0-2$ kOe y luego con un paso de 1 kOe $2-10$ kOe.	85
4.13. Corriente Crítica en función del campo medido en la muestra $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$ para $T = 3, 4$ y 5 K.	86
4.14. T_c de la muestra $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$ antes y después de la irradiación con neutrones.	87
4.15. Densidad de corriente crítica de la muestra $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$ a $T=4$ K antes y después de la irradiación con neutrones.	88
A.1. Diagrama esquemático de la fabricación de membranas porosas explicado en mayor detalle.	96

Índice de tablas

2.1. Parámetros de crecimiento de películas delgadas de Nb y B	18
3.1. Tiempo de primera anodización de membranas porosas	33
3.2. Muestras fabricadas con sus respectivas temperaturas de transición superconductora.	36
3.3. Radio por el que circula la corriente obtenido a partir de mediciones de Tc vs. H.	39
3.4. Parámetros obtenidos del procesamiento de las imágenes de SEM de las membranas porosas: diámetro de poros, densidad de poros, parámetro de red y tamaño de grano.	43
3.5. Función de distribución de pares. Radio al cual $g(r) \rightarrow 1$	45
3.6. Campos de conmensuración calculados	51
3.7. Energía de anclaje (U_p) para el primer campo de conmensuración obtenida a partir de la velocidad de relajación magnética S y la ecuación 3.18. La segunda columna corresponde a la distancia de orden longitudinal.	61
3.8. Valor de L esperado, L^* , para el cual U_p es exactamente igual al valor calculado	64
4.1. Notación utilizada para identificar cada superred	70
4.2. Espesor de la superred determinado a partir de la pendiente del gráfico m^2 y $\sin^2\theta$	77
4.3. Espesor, rugosidad y longitud de coherencia obtenidos usando el programa Parratt32 de la muestra $(Nb_5/B_5)_{\times 10}$	79
4.4. Temperatura crítica de las superredes obtenida mediante medidas de transporte eléctrico y momento magnético.	81
4.5. Longitud de coherencia ξ y espesor de capa superconductora de las muestras $(Nb_{10}/B_{10})_{\times 10}$ y $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 10}$	83

Resumen

Un tema de gran interés en el campo de los superconductores tipo II, tanto desde el punto de vista científico como tecnológico, ha sido la dinámica de las líneas de flujo o vórtices. El movimiento de los vórtices se ve fuertemente afectado por el tipo, fuerza y correlación de los defectos presentes en el material superconductor. Esto ha impulsado a la comunidad científica a fabricar distintos tipos de defectos. Particularmente, en lo que respecta a películas superconductoras de baja temperatura se han aplicado varias técnicas como litografía electrónica e irradiación de iones focalizados para fabricar centros de anclaje en escala submicrométrica. Estos fueron fabricados como huecos, puntos magnéticos, puntos no magnéticos, en un arreglo perfectamente periódico, como redes triangulares o cuadradas. Sorprendentemente un aspecto poco estudiado es la interacción de vórtices con centros de anclaje que presentan orden de corto o medio alcance. Esta última situación será el foco de este trabajo.

Para estudiar el efecto del desorden en redes de centros de anclaje sobre las propiedades de la red de vórtices superconductores se depositaron por pulverización catódica DC películas delgadas de Nb sobre membranas porosas de alumina, cuya red de poros genera centros de anclaje de las líneas de flujo magnético. Dichas membranas porosas fueron crecidas por el Dr. Carlos Montón y su equipo de trabajo mediante el método de doble anodizado de aluminio, siendo el tiempo de primera anodización, el parámetro variable. Si bien este sistema (películas delgadas superconductoras depositadas sobre redes porosas de aluminio fabricadas mediante un proceso de anodización) ha sido previamente estudiado y caracterizado [1, 2, 3] hasta ahora no se ha profundizado en el estudio del efecto del desorden en dichas redes y su impacto sobre los propiedades del superconductor.

Con el fin de determinar el grado de orden de las redes porosas crecidas, se tomaron micrografías de la superficie de estas mediante SEM y haciendo uso de dos paquetes de software se caracterizaron las propiedades estructurales de la red de poros. Los resultados de este análisis permitieron determinar que aumentar el tiempo de primera anodización durante la fabricación conlleva a una red de poros más ordenada, con características más similares a una red policristalina de granos cada uno de ellos con estructura hexagonal.

Las propiedades superconductoras de las películas de Nb crecidas sobre el arreglo de

centros de anclaje se determinaron midiendo magnetización en función de temperatura enfriando las muestras sin campo aplicado (Zero Field Cooling, ZFC) y con campo aplicado (Field Cooling, FC), encontrando que la temperatura crítica de las películas se encuentra en un rango entre 7,5 - 8 K. Dado que nuestras muestras presentan topología no conexas, se realizaron mediciones de ZFC y FC a diferentes campos magnéticos, entre 0 y 10000 Oe, con el fin de determinar si se observaba el efecto Little-Parks, el cual fue de hecho observado.

Un efecto típico en un sistema como el nuestro, dada la periodicidad de la red de centros de anclaje, es el efecto de conmensuración entre la red de centros de anclaje y la red de vórtices. Este se observó como máximos en la diferencia entre ambas ramas de la curva de histéresis de magnetización a $H \sim 2200\text{Oe}$. Adicionalmente se calculó la energía de anclaje U_p mediante mediciones de relajación magnética y la teoría de “creep” de Anderson-Kim, encontrando que esta tiene un valor mayor para campos de conmensuración. Otro aspecto observado a partir de las mediciones de relajación fue que la energía de anclaje presenta una correlación no monótona con el grado de orden de la red de centros de anclaje, encontrando un anclaje más efectivo para una red con desorden intermedio. Esto creemos se debe al grado de orden de las redes de centros de anclaje aquí trabajadas.

Finalmente, a pesar de que el título de esta tesis sólo refleja un tema de investigación, durante el transcurso de la misma también se exploró la posibilidad de utilizar superredes de Nb/B para fabricar dispositivos sensores de neutrones por borde de transición (TES). Nuestra motivación reside en la reciente etapa de crisis que atraviesa la detección de neutrones debido a la restricción internacional en la venta de ^3He , en base al cual se construyeron históricamente los detectores de neutrones. La idea, es utilizar la resistencia del Nb en la cercanía de la temperatura de transición (T_c) como el parámetro para detectar la energía depositada y el Boro como el material para capturar la radiación. Para ello se crecieron superredes de Nb / B mediante pulverización catódica DC y RF variando el espesor de Niobio y Boro. A estas, se les analizó la estructura cristalina encontrando que las capas de Nb presentan un crecimiento texturado en la dirección (110). Además se calculó el período de modulación de la superred y el espesor total de la muestra mediante reflectividad de rayos X.

Respecto a las propiedades superconductoras de las superredes de Nb/B se realizaron medidas de magnetización y transporte para determinar la temperatura crítica y la densidad de corriente crítica. De las medidas de temperatura crítica pudimos verificar la reproducibilidad de los resultados.

Por último, con el fin de verificar si el sistema de superredes Nb / B es un buen candidato para un detector de borde de transición de neutrones se irradió una de las superredes fabricadas con un flujo de neutrones térmicos de $2,53 \times 10^7 \text{n/cm}^2/\text{s}$, con 3% de incerteza. Problemas técnicos durante la irradiación ocasionaron que el flujo

incidente fuera tres órdenes de magnitud superior a la usualmente usada en pruebas de este tipo. Aún así, posteriores mediciones de propiedades de transporte de la superred mostraron superconductividad después de la irradiación, evidenciando que esta es robusta. Si bien hace falta realizar más irradiaciones para determinar si este sistema es apto, los resultados encontrados hasta ahora sugieren que el sistema Nb/B es un buen candidato para un detector de borde de transición de neutrones.

Palabras clave: SUPERCONDUCTORES, CENTROS DE ANCLAJE, VÓRTICES, ORDEN, CONMENSURACIÓN, BORO, DETECTOR DE NEUTRONES.

Abstract

A topic of great interest in the field of type II superconductors, either scientifically and technologically, has been the flux lines or vortex dynamics. The vortex's movement is strongly affected by the type, strength and correlation of the defects present in the superconducting material. This has prompted the scientific community to manufacture different types of defects. Regarding low temperature superconducting films, several techniques such as electronic lithography and focused ion beam irradiation have been applied to manufacture pinning centers on a submicrometer scale. These were manufactured as holes, magnetic dots, non-magnetic dots, in a perfectly periodic arrangement, such as triangular or square lattices. Surprisingly, a not sufficiently studied field is the interaction of vortices with pinning centers that exhibit short or medium range order.

For the study of the disorder effect in pinning centers array on the superconducting vortex lattices properties thin Nb films were deposited by sputtering DC onto porous alumina membranes, which pore lattice generates pinning centers for the magnetic flux lines. Those porous membranes were grown by Dr. Carlos Montón and his team through the method of double anodizing of aluminum, being the time of first anodization, the variable parameter.

With the purpose to determine the order degree of the grown porous lattices, micrographs of the surface of these were taken by SEM and the structural properties of the pore lattices were characterized. The results of this analysis made it possible to understand that increasing the time of first anodization during fabrication leads to a more organized pore lattice, with characteristics more similar to a polycrystalline grain lattices, each one with an hexagonal structure.

The superconducting properties of Nb film grown over the pinning centers arrangements were determined by measuring magnetization as a function of temperature, by cooling the samples without applied field (Zero Field Cooling, ZFC) and with applied field (Field Cooling, FC), finding that the critical temperature of the films is in a range between 7.5 - 8 K. Measurements of ZFC and FC were made at different magnetic fields, between 0 and 10000 Oe, in order to determine if the Little-Parks effect was observed, which was in fact observed.

A typical effect in a system like ours, given the periodicity of the pinning center array, is the commensuration effect between the pinning center array and the vortex

lattice. This was observed as maximum in the difference between both branches of the magnetization hysteresis curve at $H \sim 2200Oe$. Additionally, the pinning energy U_p was calculated by magnetic relaxation measurements and the Anderson-Kim theory of “ creep ”, finding that the vortex dynamics seems to have some correlation with the commensuration fields, being this one smaller for matching fields. Another aspect observed from the relaxation measurements was that the pinning energy has a non-monotonous correlation with the degree of order of the array pinning centers, finding a more effective pinning for a array with intermediate disorder. We believe this is due to the degree of order of the array pinning centers studied here.

Although the title of this thesis only reflects one particular research topic, during the course of this thesis the possibility of using Nb / B superlattices to manufacture neutron sensing devices by transition edge (TES) was also explored. Our motivation lies in the recent crisis stage that the neutron detection is going through due to the international restriction in the sale of 3He , based on which the neutron detectors were built historically. The idea is to use the resistance of Nb in the vicinity of the transition temperature (T_c) as the parameter to detect the deposited energy and Boron as the material to capture the radiation. For this, Nb / B superlattices were grown by DC and RF sputtering varying the thickness of Niobium and Boron. For these, the crystalline structure was analyzed finding that the layers of Nb have a textured growth in the (110) direction. In addition, the period of modulation of the superlattice and the total thickness of the sample was calculated by X-ray reflectivity.

Regarding the superconducting properties of the Nb / B superlattices, magnetization and transport were measured to determine the critical temperature and also the critical current density. For the measurements of critical temperature we were able to verify the reproducibility of the results.

Finally, in order to verify whether the Nb / B superlattice system was a good candidate for a neutron transition edge detector, one of the superlattices manufactured was irradiated with a thermal neutron flux of $2.53 \times 10^7 n/cm^2/s$, with 3 % uncertainty. Technical problems during irradiation caused the incident flow to be three orders of magnitude larger than usually used in tests of this type. Even so, subsequent measurements of the transport properties of the superlattice showed superconductivity after irradiation, evidencing that it is robust. This results suggest that the Nb / B system, in effect, it is a good candidate for a neutron transition edge detector.

Keywords: SUPERCONDUCTORS, PINNING CENTERS, VORTEX, ORDER, MATCHING, BORON, NEUTRON DETECTOR.

Capítulo 1

Introducción

*“ Jonas: Why did you decide to help me after all?
Tannhaus: Why? That’s a big word. Why do we decide for one thing and against another? But does it matter whether the decision is based upon the consequence of a series of causal links? Or whether it stems from an undefined feeling inside me? That perhaps everything in my life boils down to this one moment. That I’m part of a puzzle. One that I can neither understand nor influence. Will you tell me... what the future’s like?..”*

— Dark

1.1. Redes de defectos desordenados

En 1957 Abrikosov mostró [4] que existe una nueva fase superconductora, en la cual el campo magnético penetra el material mediante tubos cada uno con un cuanto de flujo magnético: $\phi_0 = h/2e = 2 \times 10^{-7} G \cdot cm^2$, denominados vórtices o fluxoides. El estudio de la dinámica de estas líneas de flujo magnético en los superconductores tipo II es un tema de gran interés desde el punto de vista científico y tecnológico. Parámetros como la corriente crítica, creep, resistencia eléctrica y magnetización están fuertemente influenciados por el movimiento de las líneas de flujo, obteniendo valores más atractivos para aplicaciones tecnológicas cuando se restringe el movimiento de estas en respuesta a la aplicación de una corriente eléctrica. Es decir, cuando se “anclan” (pinning) los vórtices.

Existen distintos mecanismos de anclaje de vórtices. En un material real hay defectos que impiden la transición a la fase superconductora a escala local. Dado que hay un costo de energía de condensación al generar el núcleo normal de los vórtices,

es natural que los vórtices encuentren los defectos propios del material atractivos para ubicarse. La recién mencionada es una forma de anclar los vórtices. Otra tiene que ver con la naturaleza magnética de los vórtices que permite utilizar defectos magnéticos como centros de anclaje.

Debido a que los vórtices son líneas de flujo magnético, es de esperar que existan interacciones repulsivas entre ellos. Dichas interacciones generan un ordenamiento periódico de los vórtices con el fin de minimizar su energía. De acuerdo a lo anterior, el anclaje de vórtices será más efectivo cuando el arreglo de defectos presente la misma periodicidad que la red de vórtices, observando un máximo en el anclaje cuando el grado de conmensuración entre la ubicación natural de los vórtices y los centros de anclaje sea mayor.

A partir de la década de los 90's se desarrollaron técnicas de litografía submicrométrica permitiendo así, fabricar centros de anclaje con dimensiones comparables a la longitud de coherencia superconductora. Ya que el campo magnético permite modificar el parámetro de red de la red de vórtices, existirán valores de H para los cuales la red de vórtices y la red de defectos resultan conmensurables. Para estos campos, la coincidencia entre ambas redes permite que el sistema se encuentre en un mínimo de energía libre sin necesidad de deformar la red. Es de esperarse entonces un aumento en el anclaje de la red de vórtices para estos campos, el cual estaría asociado a un aumento en la densidad de corriente crítica. Esta hipótesis fue comprobada experimentalmente para el caso de una red hexagonal con puntos magnéticos y no magnéticos [5] [6], en la que mediciones de transporte reflejaron una importante disminución de la resistencia (en mediciones de magnetización se esperarían ver picos) para los campos en los cuales el área de la red de vórtices es igual al área de la red de defectos. Experimentos posteriores [7] [8] han estudiado el caso de redes cuadradas y rectangulares, donde la energía elástica comienza a jugar un papel más importante.

Sorprendentemente, la influencia del desorden en la red de defectos y su impacto sobre los efectos de conmensurabilidad ha sido poco estudiada. Si bien se espera que la conmensurabilidad que se desarrolla entre la red de vórtices y la red de centros de anclaje implique un alto grado de orden a largas longitudes de correlación vórtices-red de anclaje, los efectos de conmensurabilidad también se han observado en redes con orden local, pero sin orden periódico (cuasiperiódico [9, 10, 11, 12, 13] y redes fractales [9]) y con orden de largo alcance no periódico [9]. Recientemente se han observado incluso en algunos sistemas con anclaje periódico de corto alcance [14]. Claramente, se necesita más investigación pues, además del interés particular dentro de la física de vórtices, este problema es relevante para una variedad de sistemas físicos que abarcan desde crecimientos epitaxiales [15], a la física de coloides [16] u otros medios elásticos en potenciales periódicos fijos [17], para los cuales las redes de vórtices en una red de anclaje artificial constituye un sistema modelo atractivo para investigar problemas

generales de conmensurabilidad. Comparado con otros sistemas físicos, las redes de vórtices superconductores tienen la ventaja de que su densidad puede ser manipulada fácilmente y reversiblemente a través del campo magnético externo.

Para el desarrollo de esta tesis se fabricaron redes periódicas mediante el doble anodizado de aluminio con el fin de ser utilizados como centros de anclajes de vórtices. Estas redes fueron fabricadas por el Doctor Carlos Montón y su grupo de trabajo en la Universidad de Texas en San Antonio, UTSA en Estados Unidos y sobre estas se depositó una capa delgada de material superconductor. Si bien este sistema (películas delgadas superconductoras depositadas sobre redes porosas de aluminio fabricadas mediante un proceso de anodización) ha sido previamente estudiado y caracterizado [1, 2, 3], e incluso se utilizó este tipo de membranas porosas para fabricar centros de anclajes de ferromagnéticos (nanopilares de níquel [18]) hasta ahora no se ha profundizado en el estudio del efecto del desorden en dichas redes y su impacto sobre las propiedades del superconductor. El objetivo del presente trabajo es determinar cómo los efectos de conmensurabilidad son afectados por la introducción de desorden en la red de centros de anclaje, en particular el desorden estructural. Si revisamos los antecedentes experimentales en los cuales se modificó el grado de desorden estructural de las redes de anclaje tenemos entre los casos más conocidos el estudio teórico llevado a cabo por Chen en 1999 [19] donde se usó simulación dinámica molecular en una red de vórtices bidimensional para investigar los efectos de desorden en la dinámica. Para esto asumió una distribución aleatoria de centros de anclaje cuya fuerza era independiente de la ubicación. En 2007 Zieman y colaboradores [14] fabricaron un arreglo triangular de centros de anclaje con orden de largo alcance mediante el uso de máscaras y comido iónico para estudiar los efectos de conmensuración dependientes de temperatura. El último caso a mencionar es el de Rosen y colaboradores en el año 2010 [20], quienes estudiaron el efecto del desorden en centros de anclaje con grado de orden de corto alcance usando el algoritmo bidimensional “car parking” para generar la configuración de centros de anclaje nanoscópicos superconductores.

1.2. Superredes de Nb/B para detección de neutrones

Una segunda línea de investigación que se exploró durante el transcurso de esta tesis, es la posibilidad de utilizar superredes de Nb/B para fabricar dispositivos sensores de neutrones por borde de transición (TES) utilizando la resistencia del Nb en la cercanía de la temperatura de transición (T_c) como el parámetro para detectar la energía depositada y el Boro como el material para capturar la radiación. En los últimos años trabajos similares a este han sido explorados por Merlo y colaboradores, quienes

fabricaron y estudiaron tiras de Nb y NbN con un cubrimiento de Boro para su posible uso como detector de neutrones [21, 22].

El neutrón es una partícula subatómica, sin carga neta, presente en el núcleo atómico de prácticamente todos los átomos (excepto el Hidrógeno). Estas partículas tienen pequeños momentos magnéticos, y son útiles para investigar las propiedades de diversas sustancias. Por ejemplo, la estructura de la proteína ha sido determinada con éxito por difracción de neutrones utilizando una placa de imagen [23]. Sin embargo, es muy difícil detectar neutrones ya que al no tener carga, la probabilidad de que interactúe con otros materiales es baja.

Un elemento que interactúa fuertemente con los neutrones es el Boro, en particular el isótopo ^{10}B a través de la siguiente reacción, $^{10}\text{B} + n \rightarrow ^7\text{Li} + \alpha$ con una alta sección eficaz de captura de 3800 barn para neutrones térmicos y abundancia natural de 20 %. Estas cualidades han hecho del boro un elemento ideal para fabricar detectores de estado sólido. Entre los materiales utilizados para este propósito, se destaca el MgB_2 , compuesto superconductor con alta temperatura de transición, $T_c=39\text{K}$, determinada por el grupo de Akimitsu[24]. El funcionamiento de un detector de neutrones de MgB_2 se basa en un fenómeno de no equilibrio causado por la reacción nuclear de los neutrones y el ^{10}B en el MgB_2 donde la energía térmica liberada por la reacción (2.31 MeV) causa un deterioro parcial de la superconductividad local del compuesto.

Un aspecto desfavorable a considerar a la hora de fabricar dispositivos con este material mediante técnicas de crecimiento de películas delgadas (film) es el desequilibrio muy grande entre las presiones de vapor del Mg y B: el Mg es un elemento altamente volátil, en contraste con el B que es un elemento con una alta temperatura de fusión. Por lo tanto, uno puede esperar dificultades respecto a la preparación in situ de películas delgadas de MgB_2 . Si además consideramos la fabricación de un dispositivo con MgB_2 , las dificultades aumentan ya que las altas temperaturas necesarias para depositar el B resultan incompatibles con la integración de dispositivos semiconductores.

En este contexto resulta interesante fabricar superredes de Nb/B como una alternativa, dado que no es necesario que los átomos de B sean parte de la estructura cristalina del superconductor. El material puede ser un compuesto inhomogeneo de B y una película delgada superconductora, como el Nb con $T_c \sim 9\text{K}$. Esto nos motivó a fabricar heteroestructuras de estos materiales para su posible uso como sensores de radiación por borde de transición (TES). Este tipo de detectores se basan en la detección de energía depositada por partículas mediante la variación de una propiedad física del material que lo compone, en la cercanía de una transición de fase, siendo la resistencia del material superconductor en la cercanía de la temperatura de transición (T_c) la propiedad física utilizada. Si bien no es nuestro interés fabricar el detector, pretendemos caracterizar el sistema Nb/B con el fin de determinar si es apto para ser usado como detector de radiación por borde de transición.

1.3. Nociones de superconductividad

Dado que ambos temas estudiados se relacionan con la superconductividad, a continuación, presentaremos algunas ideas y nociones generales de la superconductividad que serán necesarias para interpretar los resultados a lo largo de esta tesis. Era 1911, Leiden, Holanda, cuando Holst, estudiante de Onnes, realizaba mediciones de resistividad en función de la temperatura observando que por debajo de 4.2K la resistividad eléctrica del mercurio sufría una abrupta caída a cero [25]. Obsevaron este efecto no sólo en el mercurio sino también en diferentes metales a una temperatura característica propia de cada material, T_c . Esto le valió para que dos años más tarde Onnes, obtuviera el premio Nobel por descubrir la superconductividad, nombre con el que bautizó esta nueva propiedad.

Dos décadas más tarde, Meissner y Oschenfeld encontraron que la resistividad nula en estos materiales estaba vinculada con otras propiedades, ya que al aplicar un campo magnético externo a un material en estado superconductor se observaba que el flujo magnético no penetraba en el material, independientemente de la historia magnética de la muestra (a diferencia de un conductor perfecto). A dicho comportamiento se le conoce como “efecto Meissner” [26] y confirmó que la superconductividad no es un fenómeno metaestable sino por el contrario una fase termodinámica [27]. El origen de la superconductividad puede ser explicado si se considera una interacción efectiva atractiva entre electrones que induce la formación de “pares de Cooper”, generando en un rango de temperatura y campo un nuevo estado caracterizado por la desaparición de la resistencia eléctrica y por el diamagnetismo perfecto [28].

Entre las posibles clasificaciones de los materiales superconductores se puede diferenciar entre los capaces de expeler el campo magnético dentro del material de manera parcial de los que no. Si el superconductor se caracteriza por la expulsión completa del flujo magnético, B , es decir estado Meissner [26], el superconductor es tipo I, y como se muestra en la figura 1.1 a. presenta un diagrama de fases muy simple en B y T . El segundo grupo, los superconductores tipo II, presentan un diagrama de fases con estructura mas rica como consecuencia de la existencia de distintos estados termodinámicos (ver figura 1.1 b). Estos estados son: i) por debajo de la línea del primer campo crítico, H_{c1} , el estado Meissner; ii) Para $H_{c1} < H < H_{c2}$ el estado mixto, donde el campo penetra en forma de tubos de flujo cuantizado denominados vórtices [4]; iii) el estado normal por encima de H_{c2} .

1.4. Longitudes características y energía de pared

Un aspecto importante a mencionar en la teoría de la superconductividad es la existencia de dos longitudes que caracterizan a los materiales superconductores: la lon-

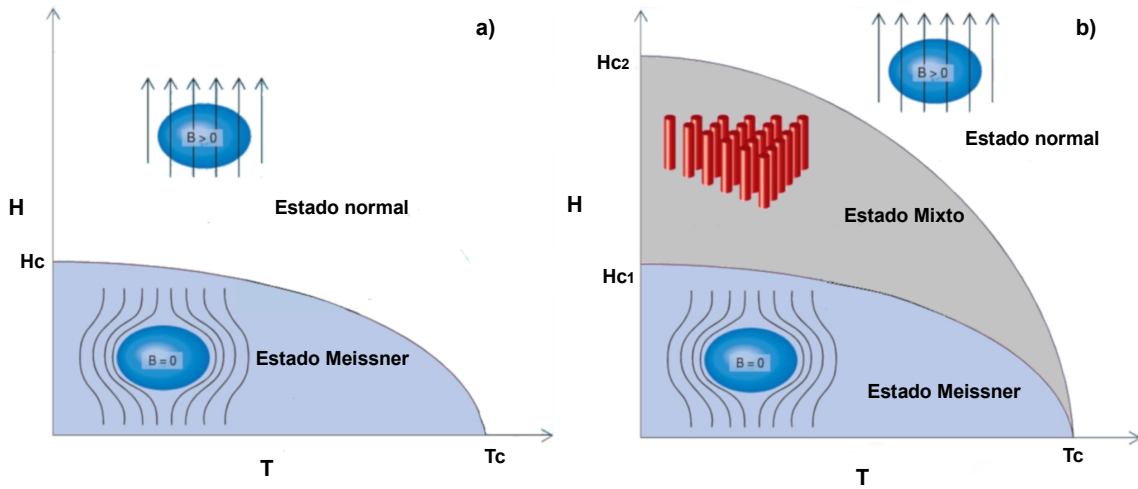


Figura 1.1: Diagrama de fase de superconductores tipo I (a) y tipo II (b).

gitud de penetración (λ), y la longitud de coherencia (ξ). La primera, implica que el apantallamiento del campo magnético, provisto por corrientes superconductoras, tiene una extensión espacial que decae exponencialmente una longitud λ . La segunda, fue introducida en la teoría de Ginzburg-Landau en la cual se asocia la densidad de electrones superconductores, n_s , con el módulo de parámetro de orden ψ y se desarrolla la energía libre de Gibbs en potencias de ψ . Las variaciones espaciales de ψ no pueden ser infinitamente pronunciadas pues la energía cinética del sistema divergería. La nueva longitud característica define la escala en la que ocurren variaciones de $|\psi|$ y se denomina longitud de coherencia ξ [29].

El parámetro de Ginzburg-Landau, definido como $\kappa = \lambda/\xi$, involucra estas dos longitudes (λ y ξ) y permite estudiar fenomenológicamente problemas inhomogéneos como la interfase superconductor / normal permitiendo diferenciar entre un material tipo I y un tipo II. Ginzburg y Landau demostraron en 1950 [30] que si $\kappa < 1/\sqrt{2}$ el material no deja penetrar flujo magnético más que en la longitud de penetración de la superficie, mientras que si $\kappa > 1/\sqrt{2}$ el material permite que el campo penetre en forma de filamentos, además de penetrar en λ desde la superficie.

Si observamos una interfase superconductor/normal (figura 1.2) podemos contrastar los casos con $\kappa < 1/\sqrt{2}$ y $\kappa > 1/\sqrt{2}$. Cualitativamente podemos notar que la energía de superficie es positiva para $\kappa < 1/\sqrt{2}$ ya que hay una región de espesor $\sim (\xi - \lambda)$ en la cual el campo magnético es expulsado de la muestra (contribuyendo a la energía positiva diamagnética), sin disfrutar de la energía de condensación asociada a la fase superconductor. En este caso, es desfavorable la formación de interfases. Caso contrario ocurre cuando $\xi < \lambda$ y el campo magnético puede penetrar en una mayor extensión de la muestra, destruyendo la menor cantidad de superconductividad posible, (superconductores tipo II). Entonces la formación de filamentos de material normal es

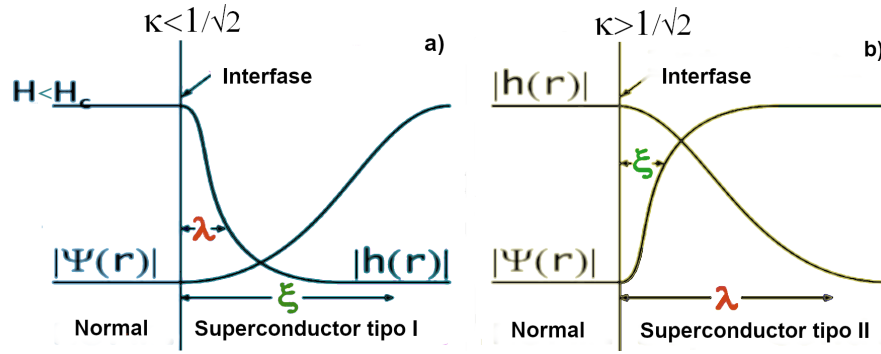


Figura 1.2: Diagrama esquemático de la variación de H y ψ en la interfase normal-superconductor. El caso en el que $\kappa < 1/\sqrt{2}$ se refiere a los superconductores tipo I y para $\kappa > 1/\sqrt{2}$ a los superconductores tipo II.

energéticamente favorable en presencia de campo magnético $H > H_{c1}$.

1.5. Campos de Nucleación

Si estudiamos el proceso que tiene lugar cuando se pasa del estado superconductor al normal a través del campo crítico H_{c2} tenemos que en esta transición $\psi \rightarrow 0$ al acercarse al borde del diagrama de fases. Esto permite realizar algunas simplificaciones en las ecuaciones de Ginzburg-Landau y trabajar con la versión linealizada de ellas,

$$\left(\frac{\nabla}{i} - \frac{2\pi A}{\phi_0} \right)^2 \psi = \frac{\psi}{\xi^2(T)} \quad (1.1)$$

donde A es el potencial vector $A = A_{\text{externo}}$ y $\phi_0 = hc/2e = 2,017 \times 10^{-7} \text{ G} \cdot \text{cm}^2$.

Si suponemos una muestra infinita con un campo magnético aplicado en la dirección z , tenemos que la solución a la ecuación anterior ya ha sido discutida en el libro “Introduction to superconductivity” de Tinkham [29], obteniendo como resultado el campo máximo al cual se puede nuclear la superconductividad,

$$H_{c2} = \frac{\phi_0}{2\pi\xi^2(T)} = \frac{\phi_0}{2\pi\xi^2(T=0)}(1-t) \quad (1.2)$$

donde t es la temperatura reducida, definida como $t = T/T_c$ y $\xi(T=0)$ es una propiedad del material, definida como la longitud necesaria para transmitir información entre las partículas superconductoras a $T=0$.

Para estudiar el efecto que produce la superficie de la muestra sobre la nucleación de la superconductividad, se considera una muestra semi-infinita cuya superficie es el plano $z = 0$ y se analiza el caso en el que H está aplicado en la dirección perpendicular a la superficie, es decir dirección z . Como existe una interfase entre la muestra y el vacío se aplica una condición de contorno que considera el hecho que las corrientes no pueden salir a través de la superficie para resolver la ecuación 1.1. Dado que el desarrollo

matemático para resolver dicha ecuación con la nueva condición de contorno es idéntico al anterior, la solución no se ve afectada, aún, si la muestra en vez de ser semi-infinita fuera una película delgada de espesor d . Esto lleva a un resultado importante: “el campo crítico perpendicular a una película delgada de cualquier espesor es el mismo que el del superconductor masivo (bulk)”. Sin embargo esto no es así cuando el campo es paralelo a la superficie de la muestra. En este caso la solución exacta [31] de la ecuación 1.1 da como resultado un nuevo campo crítico para la nucleación de la superconductividad conocido como H_{c3} ,

$$H_{c3} = 1,695H_{c2}. \quad (1.3)$$

El resultado obtenido muestra que cuando el campo se aplica paralelo a la película delgada, la superconductividad se nuclea en una capa de espesor ξ en la superficie de la película. Este resultado se conoce como “superconductividad superficial”. En el caso que el espesor de la película delgada, d , es mucho mayor que ξ , ambas caras de la película serán independientes unas de otras. Para el límite en donde $d \ll \xi$ ambas superficies están fuertemente acopladas y se puede demostrar [29] que el campo crítico paralelo es:

$$H_{c2\parallel}(T) = \sqrt{12} \frac{\phi_0}{2\pi d \xi(T)} = \sqrt{12} \frac{\phi_0}{2\pi d \xi(0)} \sqrt{1-t}. \quad (1.4)$$

Esta ecuación se puede interpretar de un modo sencillo. El factor ξ^2 en H_{C2} (ecuación 1.2) proviene del hecho de que la superconductividad se nuclea en la dirección perpendicular al campo. En una película delgada donde $d \ll \xi$, la superconductividad debe nuclearse en una distancia d en la dirección perpendicular a la superficie. Es esta la razón por la que $H_{C2\parallel}$ es inversamente proporcional al producto $d\xi$ y no a ξ^2 .

Las ecuaciones de H_{C2} y H_{C3} serán de gran importancia durante el desarrollo de esta tesis, ya que a partir de ellas podremos calcular el valor de la longitud de penetración ξ en el caso del Nb y del espesor de la capa superconductora en el caso de las superredes Nb/B.

1.6. Superconductores tipo II: Los vórtices

En la sección anterior se diferenciaron los materiales superconductores sobre la base de la aparición de una nueva fase, el estado mixto. A mediados de 1950, Abrikosov dedujo la forma en que el campo magnético penetra en los superconductores tipo II, esto es en forma de tubos o cilindros donde el material se encuentra en estado normal, es decir donde el parámetro de orden superconductor es suprimido en un radio $\sim \xi$. En este además, penetra el campo magnético, rodeado de corrientes superconductoras

que hacen que el campo decaiga al alejarse del centro en una distancia λ . En la figura 1.3 se muestra el corte de un vórtice

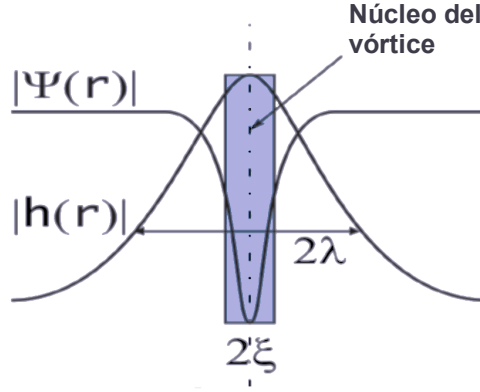


Figura 1.3: Esquema de un vórtice. Esta entidad puede pensarse como un cilindro de material normal de radio ξ , circunvalado por corrientes superconductoras que decaen en un radio λ .

Dado que los vórtices son líneas de flujo magnético es de esperarse que existan interacciones entre ellos. Tinkham muestra (Sección 5,2: “Interaction between vortex lines”)[29] que la energía de interacción entre vórtices está dada por: $U_{12} = \frac{\phi_0}{4\pi} h_1(r_2) = \frac{\phi_0^2}{8\pi^2\lambda^2} K_0\left(\frac{r_{12}}{\lambda}\right)$ siendo r_1 y r_2 la posición de los dos vórtices, r_{12} la distancia entre estos y $h(r)$ el campo magnético microscópico determinado por las ecuaciones de London, cuya solución exacta para una geometría cilíndrica (si consideramos al vórtice ubicado en el origen del sistema de coordenadas), es la función de Hankel de orden cero K_0 y r_{12} es la distancia entre vórtices. Puesto que como se muestra en la misma sección del libro de Tinkham, la función de Hankel de orden cero decrece como $r_{12}^{-1/2}e^{-r_{12}/\lambda}$ a largas distancias y varía logarítmicamente a cortas distancias, este término siempre aumenta la energía del sistema cuando los vórtices se acercan, de modo que la interacción es repulsiva. Esto lleva a que en la fase mixta de un superconductor isotrópico perfecto (sin defectos), la minimización de la energía libre del sistema lleva a los vórtices a ordenarse formando una red.

La propuesta original de Abrikosov fue un arreglo de geometría cuadrada [32]. Años mas tarde Kleiner, Roth y Autler [33] demostraron que un ordenamiento periódico triangular resulta en una disminución del 1 % de la energía libre del sistema respecto a un ordenamiento cuadrado. La confirmación de que los vórtices se ordenan respecto a un arreglo triangular pudo ser comprobada con experimentos de difracción de neutrones de bajo ángulo [34] y más tarde mediante técnicas de decoración magnética y microscopía electrónica [35].

Otro aspecto importante que Abrikosov notó fue que cada vórtice porta un cuanto de flujo magnético, $\phi_0 = hc/2e = 2,017 \times 10^{-7} G \cdot cm^2$, dentro de cada celda unidad del arreglo de vórtices.

La condición de cuantificación del flujo magnético dentro de un vórtice, sumada a la

continuidad del flujo magnético que atraviesa la muestra permite relacionar el parámetro de red de las redes de vórtices con el campo magnético aplicado, lo cual implica la posibilidad de controlar el parámetro de red de la red de vórtices mediante el campo magnético aplicado. En la siguiente sección, correspondiente al anclaje de vórtices mediante redes de centros de anclaje, se discutirá la importancia de este mecanismo en la “sintonización” entre ambas redes.

1.6.1. Anclaje de vórtices

En presencia de una densidad de corriente de transporte externa $\vec{J}(\vec{r})$, la fuerza que se ejerce sobre un vórtice es:

$$\vec{f} = \vec{J}(\vec{r}) \times \vec{\phi}_0. \quad (1.5)$$

El movimiento de las líneas de flujo generado por esta fuerza induce un campo eléctrico paralelo a la corriente original y en la dirección perpendicular del movimiento de las mismas:

$$\vec{E} = \frac{\vec{B} \times \vec{v}}{c}. \quad (1.6)$$

Por lo tanto, en oposición a la relación constitutiva de las ecuaciones de London [29]

$$\vec{J} = -\frac{1}{\Lambda c} \vec{A} \quad (1.7)$$

donde $\Lambda = \frac{4\pi\lambda^2}{c^2}$ y A el potencial vector ahora tenemos

$$\vec{J} = \frac{1}{\sigma} \vec{E}. \quad (1.8)$$

Es decir, si se hace pasar una corriente por un superconductor tipo II, el movimiento de vórtices puede generar una caída de potencial. Este voltaje sería proporcional al número de vórtices y a la velocidad de los mismos. En otras palabras, el sistema evidencia una magnetoresistencia no nula.

Esto conlleva entonces, en pos de conservar la ausencia de resistencia eléctrica para su uso en aplicaciones, a tratar de evitar de alguna forma el movimiento de los vórtices como respuesta a la aplicación de una corriente. Este hecho es comunmente conocido como “anclar” los vórtices.

1.6.2. Mecanismos de Anclaje

Los mecanismos de anclaje de vórtices más conocidos son:

- Defectos intrínsecos: La fabricación de películas delgadas genera inevitablemente la existencia de defectos tales como dislocaciones, fallas de apilamiento, y defectos locales. En esta región del material la superconductividad está deprimida por tanto, resulta atractivo para los vórtices ubicarse allí.
- Defectos por irradiación: La aparición de los superconductores de alta temperatura trajo consigo una nueva disposición de los vórtices, estos ahora son objetos flexibles a altas temperaturas, por tanto es imprescindible anclar el vórtice en toda su extensión. En este contexto se generaron defectos tipo columnares mediante la exposición de la muestra a un bombardeo iónico [36, 37]. En su paso por el material, los iones dejan conductos de tamaño comparable a la longitud de coherencia del material. Al transicionar la muestra al estado superconductor estos defectos resultan atractivos para la ubicación de los vórtices. El mayor inconveniente con este mecanismo de anclaje es la falta de control sobre la localización de los defectos, ya que se producen en sitios aleatorios.
- Modulación del espesor: Otra alternativa para reducir la energía libre asociada al núcleo del vórtice sin la total depresión del carácter superconductor de la muestra radica en realizar disminuciones del espesor de las películas delgadas. Si tenemos una película delgada con variaciones de espesor, será energéticamente conveniente que el vórtice se ubique en las regiones donde el espesor es menor, ya que allí la energía asociada a la creación del vórtice es menor, mientras que la energía ganada por relajar la presión magnética externa será esencialmente la misma [38, 39].

1.6.3. Anclaje por redes periódicas

Como se discutió en la sección anterior, los vórtices adoptan un ordenamiento periódico en busca de una minimización de su energía libre, es por esto que independientemente del mecanismo de anclaje utilizado, la ubicación geométrica de las líneas de flujo resulta también un factor importante. Fabricar una red de defectos con igual periodicidad que la red de vórtices sería el método más efectivo para anclar las líneas de flujo. Cuanto mayor sea el grado de conmensuración entre la ubicación natural de los vórtices y los centros de anclaje mayor será el anclaje (lo que lleva a una mayor corriente crítica). Ya que el campo magnético permite modificar el parámetro de red de la red de vórtices, existirán valores de H para los cuales la red de vórtices y la red de defectos resultan conmensurables, más precisamente, los campos para los cuales se cumpla,

$$|H| = \frac{n \cdot \phi_0}{A} \quad (1.9)$$

en el caso que ambas redes tengan la misma geometría, donde A es el área de la celda unidad de la red de defectos y n es un número entero que indica la cantidad de vórtices dentro de cada celda unidad. Para estos campos hay coincidencia entre ambas redes sin necesidad de deformar la red de vórtices. Técnicas como litografía electrónica y el doble anodizado de aluminio han permitido la fabricación de redes periódicas con dimensiones comparables a la longitud de coherencia. En 1997 Martin y colaboradores fabricaron un arreglo hexagonal con puntos magnéticos [5] observando mediante mediciones de transporte una importante disminución de la resistencia para los campos descritos en la ecuación 1.9. Un año más tarde el mismo equipo de trabajo estudió el caso de redes cuadradas donde la energía elástica comienza a jugar un papel más importante [6].

1.7. Estado crítico y estimación de corriente crítica

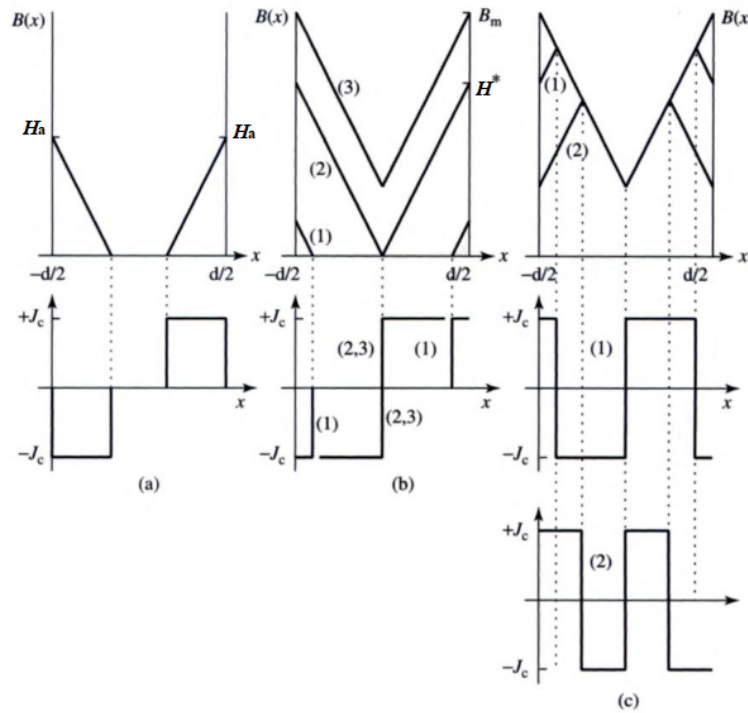


Figura 1.4: Modelo de Bean. a) distribución de flujo (parte superior) y correspondiente distribución de corriente (parte de abajo) después de aplicar un campo externo H_a el cual es subsecuentemente mantenido constante. b) (1) situación similar a a); (2) después de aumentar H_a hasta H^* donde el frente de flujo alcanza el centro de la muestra, situación conocida como estado crítico y (3) después de incrementar el campo H_a por encima de H^* , hasta H_m . c) Muestra el efecto de bajar el campo aplicado caso (1) y caso (2) para diferentes campos. Figura tomada de [40].

Dado que durante este trabajo, mencionaremos varias veces el concepto “estado crítico del superconductor”, conviene aclarar a que hace referencia esta frase. El estado crítico de un superconductor está relacionado con la capacidad limitada de este para

transportar corriente. Bean, introdujo la idea de un modelo de estado crítico para derivar propiedades magnéticas de los superconductores tipo II. En él considera a la corriente crítica J_c constante, es decir, J_c varía linealmente con el campo magnético interno, por tanto a través de la relación de Maxwell $\nabla \times B = \mu_0 J_c$ si conocemos uno de estos podemos calcular el otro.

En la figura 1.4 se muestra un esquema correspondiente al gradiente de flujo $\frac{\partial B}{\partial x}$ y a la densidad de corriente crítica J_c para distintos campos aplicados H y en varias situaciones, incluyendo cuando se invierte la dirección del campo al reducir el campo aplicado después de alcanzar un valor H_m mayor que H^* . Este último, es el campo donde el flujo empieza a penetrar en el centro de la muestra. En todos estos esquemas $|J_c|$ es constante en espacio y tiempo. La situación en la que el frente de flujo alcanza el centro de la muestra y la corriente es igual a J_c en toda la muestra, es el conocido estado crítico de Bean.

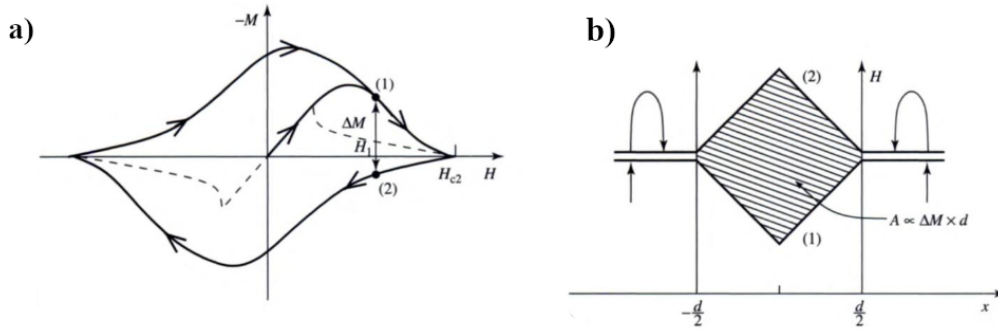


Figura 1.5: a) Esquema de magnetización en función del campo en un superconductor tipo II con anclaje. Magnetización empieza de cero. Puntos 1 y 2 se refieren al mismo campo magnético con distinta magnetización. La línea punteada es la magnetización sin anclaje. En b) se muestra un esquema de como se obtiene la diferencia en magnetización ΔM .

De la manera como se muestra el modelo de Bean en la figura 1.4 se considera a J_c independiente de B , condición que no es del todo correcta. Se puede derivar una relación entre J_c y la magnetización a partir de una curva de magnetización, $M(H)$, como la que se muestra en la figura 1.5a en la cual el anclaje juega un papel importante. La figura 1.5b indica como el área representa la diferencia en magnetización de la muestra en el punto 1 y 2 de la figura 1.5a.

La diferencia total de magnetización a H_1 en este caso es $\Delta M = M_{\uparrow} - M_{\downarrow} = \Delta M(H_1)$, donde en el punto 1 hemos llegado a (H_1) desde campos más bajos y en el punto 2 desde campos más altos. Como se observa en 1.5b, los dos acercamientos a (H_1) resultan en diferentes valores de magnetización M_{\uparrow} y M_{\downarrow} . Ya que en el modelo de Bean tenemos que $J_c = M(x)/x$, entonces $M(x) = J_c x$. Si calculamos

$$M_{\downarrow} = -\frac{1}{d/2} \int_0^{d/2} J_c x dx = -\frac{1}{4} J_c d, \quad (1.10)$$

y correspondientemente $M_{\uparrow} = \frac{1}{4}J_c d$, la diferencia es entonces $\Delta M = M_{\uparrow} - M_{\downarrow} = \frac{1}{2}J_c d$ y

$$J_c = 2 \frac{\Delta M(H)}{d}, \quad (1.11)$$

La ecuación 1.11 es de gran importancia, ya que nos permite estimar J_c de un ciclo de magnetización $M(H)$. De acuerdo a la geometría de la muestra el término de la derecha será modificado, en el caso de una película delgada

$$J_c \sim \frac{\Delta M(H)}{w[1 - (w/3y)]}, \quad (1.12)$$

donde w es el ancho de la película, y la longitud de la muestra, el campo se aplica perpendicular a la muestra y se debe cumplir que $w < y$.

1.8. Niobio

Para los dos temas trabajados durante este doctorado el material superconductor elegido fue el mismo, Niobio.

El Niobio (Nb) es el elemento con mayor temperatura crítica $T_c = 9,26\text{K}$ en la tabla periódica, uno de los tres elementos superconductores tipo II junto con el Vanadio y el Tecnecio. El Nb bulk tiene longitud de penetración $\lambda(0) = 44\text{nm}$ y $\xi(0) = 38\text{nm}$, por lo que su parámetro de Ginzburg-Landau κ es cercano a 1. En el caso de las películas de Nb la longitud de penetración varía con el espesor de la película, de acuerdo a Gubin $\lambda(0)$ aumenta gradualmente con la reducción del espesor de la película, variando desde 100 nm para películas de espesor $t = 100$ nm hasta 230 nm para películas delgadas de $t = 8$ nm [41]. En cuanto a la longitud de coherencia a $T=0$, esta es ≈ 10 nm en el caso de películas de espesores entre 5-200 nm [42]. Las películas delgadas fabricadas en el Laboratorio de Baja Temperatura presentan una longitud de coherencia de $\xi \sim 12\text{nm}$ [43]

Capítulo 2

Técnicas experimentales

“ We have now sunk to a depth at which restatement of the obvious is the first duty of men”

— George Orwell

En este capítulo introduciremos al lector en los conceptos básicos relacionados a cada una de las técnicas utilizadas para la fabricación y caracterización de las muestras, tanto películas de Nb sobre membranas porosas como superredes de Nb/B. Debido a que el listado de técnicas usadas es extenso, la descripción no pretende ser detallada, sino introducir los conceptos necesarios para comprender y discutir los resultados obtenidos. En lo referente al crecimiento de películas delgadas, se describe la técnica de pulverización catódica (sputtering). La caracterización de las muestras fabricadas fue sistemática empleando técnicas experimentales como difracción de rayos X (XRD), reflectividad de rayos X (XRR) y la técnica de microscopía electrónica de barrido (SEM). Además, se realizaron mediciones complementarias como microscopía de fuerza atómica (AFM) y microscopía electrónica de transmisión (TEM) gracias a la colaboración con diversos laboratorios del Centro Atómico Bariloche (CAB). Por último, se describe el proceso estándar de litografía óptica y electrónica utilizado para la fabricación de contactos y se describen los equipos utilizados para medir transporte eléctrico y magnetización.

2.1. Crecimiento de muestras

2.1.1. Técnica de Sputtering

Las películas delgadas (films) y superredes fueron crecidas mediante pulverización catódica o “sputtering” [44]. Esta técnica se basa en el bombardeo con iones energéticos de un cátodo cubierto con el material sólido que se desea depositar, comúnmente conocido como “blanco”. El conjunto de cátodo + blanco se conoce usualmente como

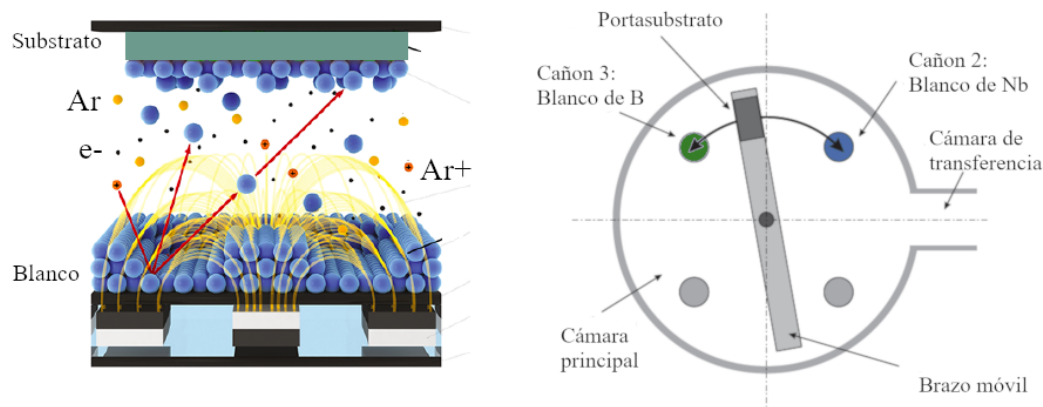


Figura 2.1: Izquierda: esquema simplificado del proceso de sputtering con la configuración magnetron sputtering [45]. Derecha: esquema de la vista superior del equipo de sputtering utilizado para crecer las muestras

“cañon”. En la colisión, los átomos que constituyen el blanco son eyectados fuera de él y viajan hacia el sustrato donde se depositan formando la película delgada. Dado que la velocidad a la cual el material es erosionado del blanco depende del número de iones que lo bombardean, es deseable incrementar la densidad del plasma frente al blanco. Esto condujo al desarrollo del “sputtering magnetron”, el cuál básicamente es sputtering con una configuración de imanes debajo del blanco de forma tal que confina el movimiento de electrones secundarios en la vecindad [44]. El objeto de esta combinación de campos, eléctrico y magnético, es que los electrones realicen trayectorias helicoidales mucho más largas que las trayectorias rectas que recorrían los electrones en ausencia de campo magnético, atrapados en las cercanías del blanco, aumentando la tasa de colisiones. Esto mejora la eficiencia de ionización del gas, típicamente Ar, permitiendo disminuir la presión del mismo en la cámara desde 100 hasta 10 mTorr, y al mismo tiempo incrementar la densidad del plasma. Tanto el incremento de la densidad del plasma como la menor presión de gas dentro de la cámara hacen que los átomos del blanco lleguen en mayor número por unidad de tiempo al sustrato.

Existen actualmente varios métodos de sputtering. A continuación describiremos brevemente los dos métodos utilizados para la fabricación de nuestras muestras, Sputtering DC y Sputtering RF. En ambos sistemas, la tasa o velocidad de depósito es proporcional a la potencia eléctrica suministrada. Así, manteniendo constante los parámetros que afectan el crecimiento (presión de trabajo, pureza del gas de sputtering, temperatura del sustrato, distancia blanco-sustrato), el espesor de la película delgada es directamente proporcional al tiempo de depósito. Es decir, a una potencia eléctrica constante se puede calibrar u obtener espesores distintos variando solamente el tiempo

de depósito.

Sputtering DC: Este sistema se utiliza para depositar materiales metálicos. Su configuración se puede describir como un par de electrodos planos dentro de una cámara de vacío: un cátodo refrigerado y un ánodo. Sobre el cátodo se ubica el blanco. Frente al cátodo, se sitúa el ánodo sobre el que se coloca el sustrato. La diferencia de potencial que se aplica entre los electrodos produce la ionización del gas dentro de la cámara, generando un plasma. En general se emplean gases nobles como el Ar aunque dependiendo del material que se quiere depositar, se pueden usar mezclas con otros gases reactivos como O_2 , llamándose “sputtering reactivo”. Los cationes del plasma son acelerados hacia el blanco, desprendiendo átomos o clusters de átomos en estado excitado o ionizado. Algunos de los átomos arrancados del blanco se depositan sobre el sustrato. Durante este proceso un número considerable de electrones secundarios son generados. Estos electrones a su vez colisionan contra otros átomos del gas ionizándolos y parte de estos electrones se recombinan con los iones emitiendo fotones característicos, que en el caso del argón le dan al plasma un color púrpura.

Sputtering RF: Si el material del blanco es aislante su superficie se carga rápidamente al ser bombardeada por los iones del gas y la descarga no puede mantenerse en el tiempo debido a que las cargas positivas se acumulan en el blanco y repelen los iones Ar^+ . Para mantener la descarga con un blanco aislante, se reemplaza la fuente de voltaje continua por una de tensión alterna RF. La gran diferencia de movilidad entre los iones positivos y electrones en el plasma, debido a sus masas, origina un fenómeno de rectificación en la zona oscura de la descarga. Esto hace que, en cada ciclo, los electrones cancelen la carga positiva implantada en el blanco, pero que en tiempos más largos, los cationes continúen siendo acelerados hacia el blanco [46]. El proceso de sputtering RF requiere también de un acople de impedancia entre la fuente y el cátodo (blanco) para obtener la máxima transferencia de potencia entre ambos. El acople además cumple la función de protector, ya que si el circuito de RF no está regulado, se origina una potencia reflejada dando lugar a que no se produzca el plasma o provocando una potencia de crecimiento inestable. Usualmente la frecuencia de la fuente de RF es de 13.56 MHz y la presión para mantener el plasma puede reducirse hasta el orden de 1 mTorr.

2.1.2. Fabricación de películas delgadas de Nb y superredes de Nb/B

Dado que el Nb es un elemento metálico, para su crecimiento se usó una fuente de corriente directa, es decir Sputtering Magnetron DC. En el caso del B, al ser este un material aislante, se depositó mediante Sputtering Magnetron RF. El gas de sputtering para generar el plasma utilizado fue Ar a una presión total de 10mTorr. El equipo utili-

zado es marca AJA y posee cuatro cañones. Gracias a esto se pueden crecer multicapas de hasta cuatro elementos diferentes, ver figura 2.1.

El material elegido como sustrato fue Si (001), el cual es ubicado en el porta-sustrato en un compartimiento solidario a un brazo móvil a través de una cámara de transferencia o “load-lock” (figura 2.1).

Una vez en el brazo móvil, el sustrato puede posicionarse sobre el blanco deseado. El movimiento del brazo mecánico es comandado por motores paso a paso a través del puerto serie de una computadora. La altura del brazo con el sustrato respecto del cañón se regula por medio de un motor dc.

Para la fabricación de las superredes el brazo móvil realiza un movimiento angular entre los cañones 2 y 3. Una vez que el sustrato está sobre el blanco de Nb, se enciende el cañón 2, provocando la descarga que deposita el material sobre el sustrato. El espesor de la película se controla a través del tiempo de exposición del sustrato sobre el cañón. Una vez transcurrido el tiempo deseado, el cañón se apaga y el brazo se mueve al siguiente cañón en donde se repite el procedimiento anterior. Este proceso se realiza tantas veces como períodos tenga la superred que se desea crecer.

Una medición previa de la velocidad de deposito de los cañones para cada material permite el control del espesor de las películas delgadas mediante el control del tiempo. En la tabla 2.1 se muestran los valores típicos de los parámetros de deposito utilizados para los distintos materiales.

Elemento	Fuente	Potencia (W)	Presión Ar (mTorr)	Tasas de crecimiento (nm/s)
Nb	DC	100	10	1.6
B	RF	20	10	0.02

Tabla 2.1: Parámetros relevantes para el crecimiento de las películas delgadas de Nb y B mediante la técnica de sputtering

Un parámetro fundamental para el crecimiento de muestras de buena calidad es la presión de vacío de la cámara antes del depósito, la cuál fue típicamente de 5×10^{-7} Torr. En el caso de superconductores se entiende por buena calidad y en el caso de mediciones de transporte a una muestra con T_c cercana a la de bulk y transición angosta.

2.2. Caracterización estructural

Para la caracterización de las películas delgadas de Nb crecidos sobre membranas porosas y las superredes de Nb/B se usaron diversas técnicas. La caracterización estructural de ambos tipos de muestras se llevó a cabo mediante difractogramas de rayos

X (XRD). Se caracterizó la superficie de las películas de Nb crecidos sobre membranas porosas usando el microscopio electrónico de barrido (SEM). A las superredes se les analizó la microestructura mediante imágenes de alta resolución en un microscopio electrónico de transmisión (TEM) y topografía superficial mediante un microscopio de fuerza atómica (AFM). A continuación se detallan los fundamentos de las técnicas y su utilización en este trabajo.

2.2.1. Difracción de rayos X

La difracción de rayos X (XRD) es una técnica versátil, no destructiva que provee información sobre la estructura cristalina. Esta permite analizar propiedades de los materiales tales como composición de fase, estructura y textura, entre otras. Nuestro objetivo al emplear esta técnica es verificar en el difractograma de rayos X, que los espesores nominales de las películas delgadas coincidan con los que deseamos depositar y que las capas depositadas presenten interfaces bien definidas (en el caso de las superredes).

El difractómetro empleado para realizar las mediciones con rayos X presentadas en esta tesis fue un PANalytical Empyrean con tubo de rayos X de cobre que opera a 40kV de tensión y 30 mA de corriente del Laboratorio de Caracterización de Materiales del CAB. Este cuenta con un detector ultra-rápido PIXel3D y la posibilidad de usar una cuna de Euler de 3 ejes (χ , ϕ y Z)[47], ver figura 2.2. Vale la pena mencionar que los sistemas de difracción contienen elementos ópticos, atenuadores, filtros, slits, etc., que deben ser configuradosun según los requerimientos de la medición a realizar [48].

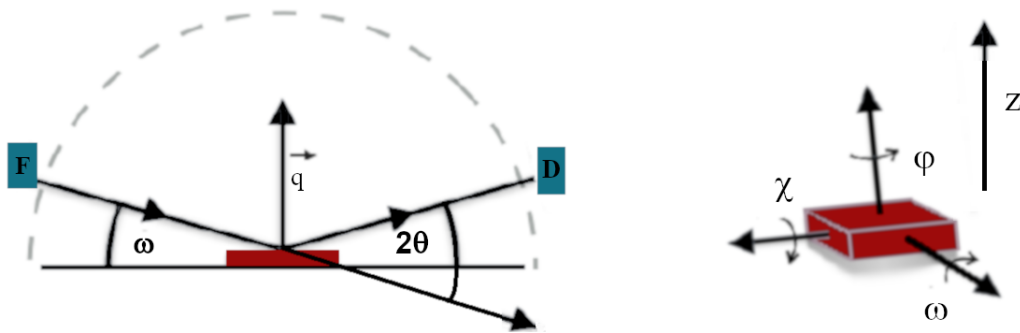


Figura 2.2: Definición de la configuración de Bragg y de los grados de libertad en el difractómetro PANalytical Empyrean. En esta configuración, el vector de difracción \vec{q} es normal a la muestra. El ángulo ω es ortogonal a χ y ϕ es el eje de rotación paralelo a Z .

Difractograma de rayos X de alto ángulo

Dado que los materiales cristalinos tienen una distribución periódica y repetitiva en el espacio, se puede estudiar la estructura cristalina de los materiales mediante la

interacción elástica de fotones de rayos X con los átomos del material, donde estos últimos dispersan la radiación incidente.

W.H. Bragg y W.L. Bragg expresaron este concepto al describir la difracción e interferencia de rayos X en un cristal como reflexiones en los planos atómicos de una red cristalina. Las posiciones de estas reflexiones son calculadas usando la diferencia de camino óptico $2s$, con $s = d \sin \theta$, entre dos rayos reflejados en espacios interplanares paralelos, ver figura 2.3. Al igual que en la óptica de luz visible, el máximo se obtiene cuando la diferencia de camino, entre los dos haces difractados es igual a un múltiplo entero de la longitud de onda del haz, λ .

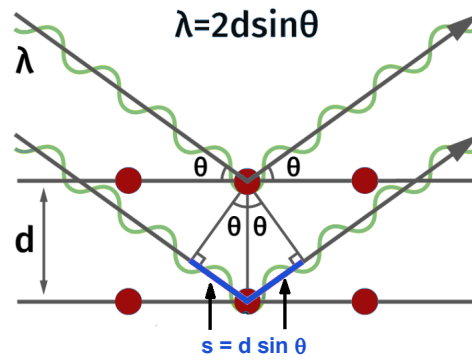


Figura 2.3: Representación esquemática de la ley de Bragg

La ecuación de Bragg que expresa este concepto es:

$$2d_{hkl} \sin \theta_{hkl} = n\lambda \quad (2.1)$$

donde hkl son los índices de Miller del plano reflectante, d_{hkl} es la distancia entre estos planos, θ_{hkl} es el ángulo correspondiente, n es un número entero y λ la longitud de onda, con un valor de 1,54184 Å para la radiación K_α promedio del Cu.

Para la medición de curvas XRD es necesario primero medir una curva de hamacado o rocking curve. Esto se debe a que usualmente, cuando se monta la muestra, esta no se encuentra en condición especular y dicho tipo de barrido permite corregir esta desalineación ($\omega \neq \theta$). Este tipo de medición consiste en mantener fijo el valor 2θ y variar ω . Si el valor $2\theta_{fijo}$ elegido corresponde a un pico de Bragg y el sistema está perfectamente alineado entonces la curva de hamacado mostrará un pico centrado en θ_{fijo} (ver figura 2.4 a), caso contrario el pico se observará en otra posición angular θ_{medido} . Si se presenta este último caso podemos corregir la alineación mediante un offset en el programa de adquisición. Dicho offset se calcula según la siguiente relación: $\omega = \theta_{fijo} - \theta_{medido}$. La reflexión que se usó para centrar la muestra fue la correspondiente al plano (110) del Nb.

Luego de realizada la corrección se procede a medir los difractogramas $\theta - 2\theta$ de rayos X de las muestras en la región de alto ángulo ($10^\circ < \theta < 90^\circ$). En este tipo

de medición se varía continuamente $\omega = \theta_{fijo} - \theta_{medido}$ mientras se colecta el haz saliente, obteniéndose como resultado una curva de intensidad, I , en función de 2θ (figura 2.4 c). La ecuación (2.1) permite calcular d_{hkl} a partir de un ángulo θ medido en condición de difracción. Para una dada estructura cristalina existen conjuntos de planos que satisfacen la condición de Bragg. En el caso de una muestra policristalina es posible observar en el rango 2θ medido las difracciones de todos los planos atómicos. Si la película delgada es texturada se observa sólo una familia de planos. A partir del análisis del patrón de difracción de la muestra, entonces es posible determinar la estructura cristalina y el parámetro de red del sistema [49].

Reflectividad o XRR

A bajos ángulos la estructura interna de los materiales deja de ser relevante. Si bien existen efectos de interferencia, para interpretar los resultados a bajo ángulo cada material analizado se considera como un medio continuo. Una curva de reflectividad permite la caracterización de espesores de películas delgadas, rugosidad y calidad de capas o interfaces para el caso de superredes.

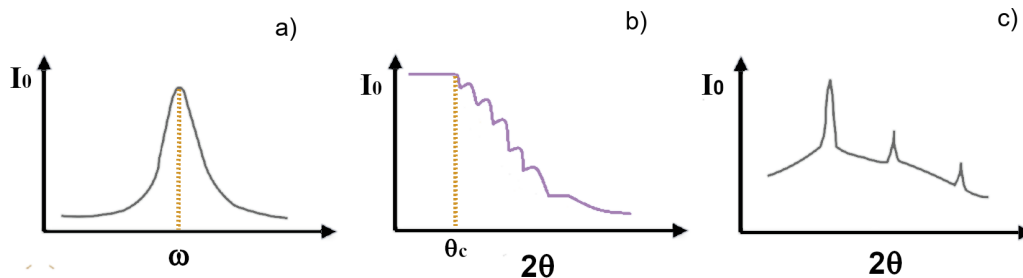


Figura 2.4: Representación esquemática de mediciones típicas de XRR y XRD en películas delgadas. a) Barrido ω , b) XRR de una película delgada poco rugosa y c) patrón de difracción de una película delgada monocristalina.

Esta técnica consiste en hacer reflejar un haz de rayos X en una superficie plana y medir la intensidad de rayos X reflejada en la dirección especular (ángulo incidencia igual al reflejado). Esta medición se realiza a bajo ángulo, cerca del ángulo crítico, θ_c , donde se produce el efecto de reflexión total. Esto se debe a que el material posee un índice de refracción para rayos X menor que 1. Para valores de θ menores que el ángulo crítico, los rayos X apenas penetran pocos nanómetros el interior de la muestra, por lo que la intensidad en esa región es constante, ver figura 2.4b Para $\theta > \theta_c$ la penetración aumenta drásticamente. En el caso de una película delgada se observa además una modulación de la intensidad debido a la interferencia asociada a la presencia de interfases (figura 2.4 b). A partir de los datos experimentales y un modelo apropiado, es posible obtener la densidad, la rugosidad y el espesor de la película delgada.

Al igual que en las medidas de rayos X a alto ángulo, se realiza también una curva de hamacado previo a medir las curvas XRR para optimizar el alineamiento de la muestra, sólo que en este caso la intensidad del pico en la curva de hamacado es debido a la reflexión ya que la condición de difracción en este caso no se satisface para los planos atómicos.

En el capítulo 3 y 4 se ampliará la teoría de difracción y reflectividad de rayos X para películas delgadas y superredes respectivamente.

2.2.2. Microscopia electrónica de barrido

El microscopio electrónico de barrido es mejor conocido por sus siglas en inglés SEM (*Scanning Electron Microscopy*). Este usa un haz de electrones de alta energía focalizado que al interactuar con la superficie a estudiar genera una variedad de señales. Las señales que derivan de esta interacción revelan información de la muestra tales como morfología y composición química de los materiales

Los electrones acelerados en un SEM poseen una cantidad significativa de energía cinética. Esta energía es disipada cuando el electrón interactúa con la muestra generando electrones secundarios y electrones dispersados, entre otros. Los electrones secundarios son generados por interacciones inelásticas. Dada su baja energía sólo los electrones que emerjan de la superficie de la muestra son detectados, por tanto estos proveen información topológica. A diferencia de los electrones secundarios los electrones retrodispersados surgen de interacciones elásticas con los átomos de la muestra. Dado que los átomos con mayor peso atómico dispersan más electrones que los átomos de menor peso esta señal permite generar imágenes con contraste por peso atómico. Además permite obtener información de la estructura cristalina y orientación de los materiales.

El SEM utilizado durante el desarrollo de esta tesis es un Zeiss Crossbeam 340, que consta de un cañón de electrones, un conjunto de lentes electromagnéticas y bobinas deflectoras para desviar el haz y barrer la superficie de la muestra, todo esto dentro de una columna de vacío [50], ver figura 2.5. Este se encuentra en el Laboratorio de Caracterización de Materiales del CAB.

2.2.3. Microscopia electrónica de transmisión

La microscopía electrónica de transmisión o TEM (*Transmission Electron Microscope*) es una técnica fascinante que permite explorar tanto el espacio real como el recíproco hasta escalas atómicas. Sin embargo, dada la alta resolución de esta técnica, el volumen total de muestra sensada es mínimo, lo que podría llegar a ser no representativo a escalas macroscópicas [45]. Su funcionamiento es similar al del SEM, la diferencia es que en este caso las imágenes se forman con los electrones que atraviesan



Figura 2.5: Foto del microscopio SEM Zeiss Crossbeam 340 utilizado para observar la topografía de las muestras.

la muestra. Para que el haz de electrones atraviese la muestra hay tres parámetros a tener en cuenta: el espesor de la muestra, que no puede ser superior a 200nm, el voltaje de aceleración de los electrones, y la conductividad del material. A continuación se describen brevemente algunas modalidades de operación empleadas para el desarrollo de esta tesis:

- **Modo imagen:** A partir de las señales que recibe el detector se pueden obtener imágenes en contraste campo claro o imágenes en contraste campo oscuro. Las primeras se obtienen al seleccionar sólo la señal del haz de electrones transmitido (que no ha sufrido dispersión) y las segundas al seleccionar uno de los haces difractados al atravesar la muestra.
- **SAD (*Selected Area Diffraction*):** En este modo de difracción, el haz de electrones incidente es paralelo y se selecciona una apertura de manera tal que el patrón de difracción que se obtiene corresponda al área seleccionada. El patrón de difracción obtenido provee información cristalográfica bidimensional, ya que la condición de Bragg está relajada en muestras finas. En el caso de un material cristalino, de acuerdo a la estructura cristalina se observará un arreglo particular de puntos.
- **HRTEM:** La interferencia entre el haz transmitido y varios haces difractados da lugar a un contraste de fases, lo que permite resolver la estructura atómica de un material cristalino. Este régimen de operación se denomina Microscopia Electrónica de Transmisión de Alta Resolución (High Resolution Transmission Electron Microscopy, HRTEM) [51].

El TEM utilizado fue un PHILIPS modelo CM200UT, cañón de LaV6 a 200 KV, cámara digital CCD KeenView de 1,3 MPix y unidad microanalítica EDAX Génesis,

perteneciente al Laboratorio de Caracterización de Materiales del CAB.

2.2.4. Microscopio de fuerza atómica

El microscopio de fuerza atómica o AFM, a diferencia de los microscopios convencionales no tiene lentes, fuente de luz o mirilla, su componente principal es una placa flexible en voladizo (cantilever) con una punta nanométrica que barre de forma continua la superficie de la muestra generando una imagen topográfica. La idea básica es que la interacción entre la punta y la superficie, genera fuerzas locales de atracción o repulsión que se ven reflejadas en una flexión o desviación del cantilever (ver figura 2.6). Si la deflexión es atractiva el cantilever se curvará hacia la superficie de la muestra y si por el contrario la interacción es repulsiva, se curvará alejándose de la muestra. La deflexión del cantilever es detectada por un haz láser que se refleja desde la punta del cantilever hacia un detector. Cuando el cantilever se deflecta o dobla, el ángulo del haz reflejado cambia, por lo que el haz se ilumina en distintas partes de un fotodetector [52].

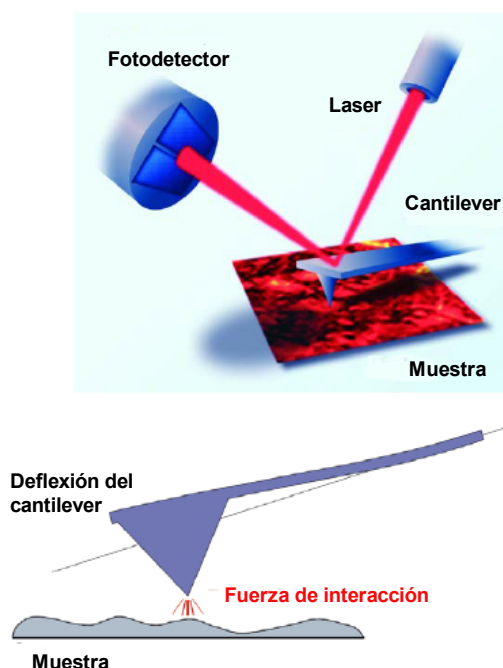


Figura 2.6: Funcionamiento de un equipo AFM y sus componentes.

El AFM también es una herramienta para medir curvas de fuerza. En este modo la base del cantilever se mueve en dirección vertical hacia la superficie de la muestra y luego se retrae. Este movimiento se realiza usando un posicionador piezoeléctrico. El resultado de este experimento se visualiza como un gráfico de altura del cantilever vs. fuerza aplicada sobre el cantilever.

Las mediciones tanto de topografía como de fuerza se realizaron en un equipo AFM Veeco Dimension 3100 que se encuentra en la División de Resonancias Magnéticas [53]. Este opera en aire, en modo contacto o tapping, con una resolución lateral de hasta 20nm y de menos de 1nm en altura.

2.2.5. Mediciones de transporte eléctrico

Los superconductores tienen muchas propiedades excepcionales. Una de las más interesantes, sin duda, es su capacidad de transportar corriente eléctrica sin disipación de potencia. Si queremos explorar los límites del transporte de carga sin pérdidas de un superconductor, conocer la temperatura a la cual el material transiciona de estado normal a superconductor y la dependencia de la resistividad con el campo magnético, una de las técnicas a utilizar es transporte eléctrico.

Fabricación de contactos para mediciones de transporte.

Para las mediciones de transporte eléctrico se utilizó el método de medición a cuatro puntas por ser particularmente útil para la medición de resistencias pequeñas, ya que elimina la contribución de las resistencias de cableado. Además, se invirtió la corriente suministrada, con el fin de eliminar los potenciales de contacto sobre la medición final de la resistencia en cuestión.

Dado que para mediciones de resistividad, magnetoresistencia y densidad de corriente crítica es necesario conocer con exactitud las dimensiones, la geometría de los contactos fue definida mediante litografía electrónica, ya que esta técnica permite resolver detalles del orden de los cientos de nanómetros, en áreas no mayores a los cientos de micrones de lado. En la figura 2.7 se puede apreciar el esquema de la configuración de contactos, siendo la muestra la región de color naranja, con una banda de $50\ \mu\text{m}$ de ancho por donde se hace circular corriente. En los extremos de esta hay dos contactos de corriente y transversal a la banda dos contactos de voltaje. La dimensión de los contactos de corriente y voltaje es de 1mm^2 .

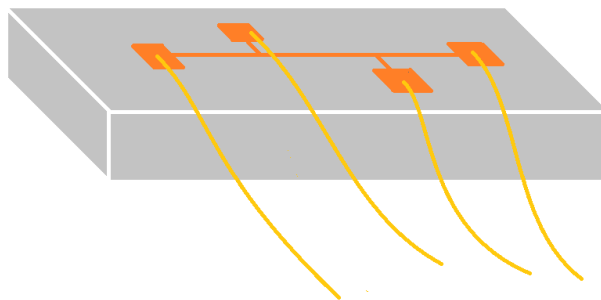


Figura 2.7: Esquema de la configuración de contactos eléctricos empleada para las mediciones de transporte.

Los pasos para la fabricación de contactos son:

1. Limpieza del sustrato.
2. Deposito y centrifugación de la resina. En este caso dicha resina se denomina polimetilmetaacrilato o PMMA, y tiene la particularidad de resultar sensible a la acción del haz electrónico de un microscopio.
3. Cocinado de la resina. Un posterior cocido a 180°C durante 120 segundos remueve los solventes restantes.

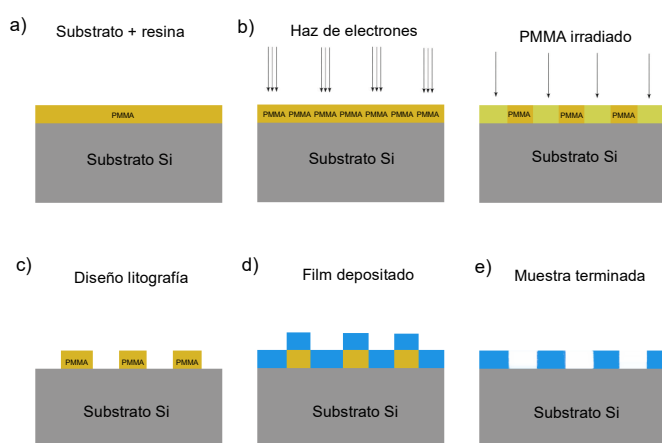


Figura 2.8: Pasos a seguir en la preparación de una película delgada mediante litografía electrónica. a. Preparación del sustrato. b. Exposición. c. Revelado. d. Deposito de la película. e. lift off

4. Exposición al haz de electrones. El haz electrónico del microscopio SEM (mencionado en la sección 2.2.2) es utilizado para escribir el diseño deseado sobre el sustrato cubierto con la resina. El efecto de este tratamiento es el de romper las cadenas del polímero de tal forma que la zona irradiada resulta más soluble frente a un dado revelador que aquella no irradiada, ver figura 2.8. Para escribir el patrón de la figura 2.7 se hizo uso del programa NPGS (Nanometer Pattern Generation System). Para poder calibrar el enfocado del haz se realizaron pequeños rayones en las esquinas de las muestras antes de colocarlas en el SEM. Estos rayones generaron pequeñas partículas en la superficie de la muestra que al ser enfocadas en distintos puntos definieron el plano de la muestra. Las dosis utilizadas varían entre los 250 y los $400\ \mu\text{C}/\text{cm}^2$, según las características del diseño, siendo común el uso de dosis grandes en diseños de grandes dimensiones.

5. Revelado. El revelador utilizado es una mezcla 1 en 3 de revelador MIBK (*Metil Iso Butil Ketona*, $\text{CH}_3\text{COCH}_2\text{CH}(\text{CH}_3)_2$) en isopropanol.

6. Depósito de la película. Mediante la técnica de Sputtering, mencionada en la sección 2.1.1 se realiza el depósito del material de preferencia.

7. Lift off. Se realiza un proceso de remoción (lift-off en inglés) que consiste en sumergir la muestra en acetona, así la máscara se elimina llevándose consigo el material depositado encima de ella.

Criostato

Las mediciones se realizaron en un pulse tube cryogenerator de la marca SHI que permite bajar la temperatura desde ambiente hasta $\sim 3\text{K}$ en 3 horas. Este cuenta con una camisa de acero inoxidable (en contacto con el ambiente) en cuyo interior se realiza vacío del orden de $\sim 10^{-6}$ Torr durante todo el proceso de medición. Además cuenta con dos pantallas de cobre como aislación de la radiación de temperatura ambiente.

El portamuestras está hecho de cobre para asegurar una buena homogeneidad de la temperatura. Solidario al portamuestras, se encuentran el termómetro y el calefactor eléctrico. La muestra se coloca sobre el portamuestras pegándola con grasa Apiezon N. Esta grasa mantiene su adherencia a muy bajas temperaturas y desgasa muy poco en alto vacío. Los contactos se prepararon pegando alambres de cobre con pintura de plata 4929N (Dupont) sobre los las películas depositadas en el diseño previamente dibujado mediante litografía.

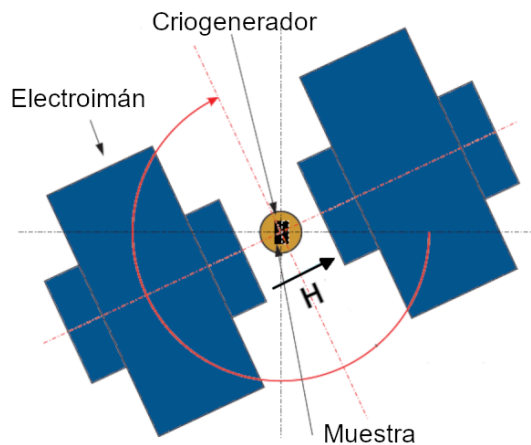


Figura 2.9: Vista superior del equipo utilizado para medir transporte. El electroimán es externo al criostato y puede rotar respecto de la muestra. En rojo se muestran los ejes solidarios al electroimán y en negro los solidarios a la muestra.

Campo magnético

El campo magnético se aplica por medio de un electroimán con núcleo de hierro externo al criostato. Las bobinas del electroimán generan 134 Oe/A de corriente. El campo máximo que se puede alcanzar es de aproximadamente $1,1\text{ T}$. La figura 2.9

esquematiza la vista superior del equipo. El arreglo experimental permite rotar al imán alrededor del equipo, variando la orientación del campo respecto de la muestra. Debido a que la distancia entre las piezas polares es de 8,8 cm el criostato y los termos de He presentan un angostamiento en su parte inferior. Mediciones previas [45] indican que la homogeneidad del campo en la región de la muestra es mejor que el 2 %.

Instrumentos de medición.

Una vez terminado la fabricación de contactos y el montaje de la muestra en el criostato se procede a medir. En el caso de las mediciones de resistencia y corriente crítica se utilizó una fuente de corriente continua Keithley 220 ó 224. Para medir el voltaje se utilizaron los nanovoltímetros Keithley 181, 182 ó HP 34420A. Este último tiene la posibilidad de medir en dos canales. La configuración experimental utilizada en el criostato permite medir simultáneamente dos muestras independientes con cuatro contactos cada una.

Alineación de la muestra

En la realización de los experimentos resulta importante la precisa alineación del campo magnético respecto del plano de la muestra. El procedimiento utilizado se basa en la dependencia angular del campo H_{c2} con la componente normal del campo magnético al ubicarnos a una temperatura cercana a la transición superconductora.

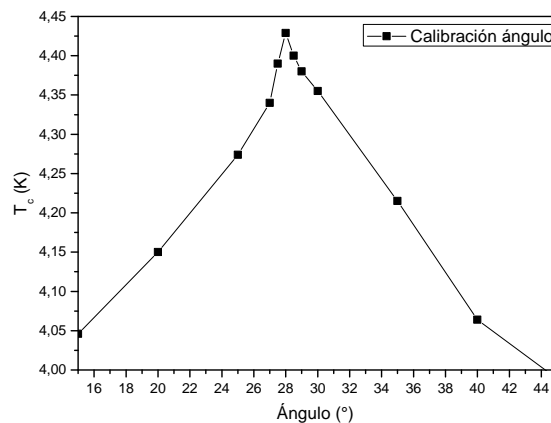


Figura 2.10: Curva típica obtenida en la alineación de la muestra con el campo magnético.

Una vez se enfriaba la muestra a una temperatura cercana a la temperatura de transición, se aplicaba un campo magnético constante de ~ 1000 Oe. Ya que el electroimán utilizado se podía rotar alrededor del criostato se monitoreaba el valor de temperatura crítica de la muestra mientras se realizaban ligeras rotaciones de las bobinas. Un máximo en la temperatura de transición se obtenía cuando el campo se hallaba

precisamente sobre el plano de la muestra. La figura 2.10 muestra una curva típica de T_c en función del ángulo del campo obtenida por este método. La alineación conseguida estaba dentro de los 0.5° .

2.2.6. Mediciones magnéticas

Además de la capacidad de los superconductores de transportar corriente eléctrica sin pérdida de potencia, otra de las propiedades interesantes en estos materiales es la capacidad de expulsar campos magnéticos externos. Esta característica permite confirmar si un material es superconductor y obtener información cuantitativa sobre su desempeño al estudiar la dependencia de la magnetización en función de temperatura y campo magnético.

Para medir la magnetización en función de campo y temperatura en nuestras muestras se utilizó un magnetómetro MPMS-5S (Magnetic Property Measurement System) de Quantum Design. Este es comunmente conocido como SQUID (*Superconducting Quantum Interference Device*), ya que es el componente más importante del equipo. Este equipo mide momentos magnéticos con sensibilidad en un rango de 10^{-6} a 0.1 emu temperatura de 2 a 300K y campo magnético de hasta 5T.

Su funcionamiento consiste en hacer pasar la muestra por una serie de tres bobinas mediante movimientos verticales a través de las mismas. Dichas bobinas están acopladas por un circuito cerrado superconductor al sistema SQUID, siendo este último un amplificador superconductor basado en junturas Josephson. Por lo tanto, la variación de corriente en la bobina (proporcional al momento magnético de la muestra) produce una variación correspondiente en el voltaje del SQUID. El valor de momento magnético se obtiene midiendo la tensión del SQUID en función de la posición a lo largo del recorrido a través de la bobina y realizando un ajuste asumiendo que lo medido corresponde al desplazamiento de un dipolo puntual. El equipo MPMS realiza automáticamente dicho ajuste.

Ya que la magnetización de nuestras muestras es pequeña, se define la posición del barrido con una muestra patrón de Pd y luego se coloca la muestra en la misma posición, lo que usualmente implica desviaciones menores a 1 mm [45].

La temperatura de la muestra en esta facilidad es regulada mediante un flujo de helio gaseoso que ingresa por una válvula aguja en la recámara de la muestra y controlada por una resistencia calefactora.

Capítulo 3

Efecto del desorden en la red de centros de anclaje sobre las características de la red de vórtices superconductores

“ When you hit a wrong note, It’s the next note that makes it good or bad”

— Miles Davis

Un tema de gran interés en el campo de los superconductores tipo II ha sido la dinámica de las líneas de flujo o vórtices. Parámetros como la corriente crítica, creep, resistencia eléctrica y magnetización están fuertemente influenciadas por la capacidad para actuar como centros de anclaje de vórtices de las inhomogeneidades locales en el superconductor. La fuerza de estos centros de anclaje y su distribución espacial determinan el grado de orden de la red de vórtices y su dinámica.

Teniendo en cuenta que la minimización de la energía libre del sistema lleva a los vórtices a ordenarse formando redes periódicas es de esperar que el anclaje sea más efectivo (lo que lleva a un incremento en la corriente crítica) cuanto mayor sea el grado de conmensuración entre la ubicación natural de los vórtices y los centros de anclaje. Para un arreglo periódico de centros de anclaje artificial los efectos de conmensuración o “matching” (matching proviene del inglés y significa en “concordancia”, apareado) se observan cuando el campo aplicado multiplicado por el área de la celda unidad de la red de defectos coincide con uno o más cuantos de flujo.

En películas delgadas superconductoras de baja temperatura se han aplicado varias técnicas como litografía electrónica e irradiación de iones focalizados para fabricar distintos tipos de centros de anclaje en escala submicrométrica. Estos fueron fabri-

cados como huecos, puntos magnéticos y puntos no magnéticos. Este tema ha sido ampliamente estudiado, con defectos en un arreglo perfectamente periódico [5, 6]. Sorprendentemente un aspecto poco estudiado es la interacción de vórtices con centros de anclaje que presentan orden de corto o medio alcance [9, 10, 14]. Esta última situación será el foco de este capítulo. La idea es depositar una película delgada de Nb sobre redes de agujeros submicrométricos, controlando el grado de desorden de las mismas mediante un proceso de doble anodizado de aluminio.

3.1. Fabricación de muestras

El Dr. Carlos Montón y su grupo de trabajo en el laboratorio de investigación nanotecnológica de la Universidad de San Antonio Texas crecieron 6 membranas porosas con distinto grado de desorden mediante el doble anodizado de una lámina de aluminio, método desarrollado en 1995 por Masuda [54, 55]. El uso de dichas membranas como sustrato nos permitió estudiar el efecto del desorden en la red de centros de anclaje de vórtices sobre las características de la red de vórtices superconductores. Si bien la explicación en detalle del proceso de fabricación se describe en la referencia [56] y en el apéndice I de esta tesis, a continuación haremos un breve resumen

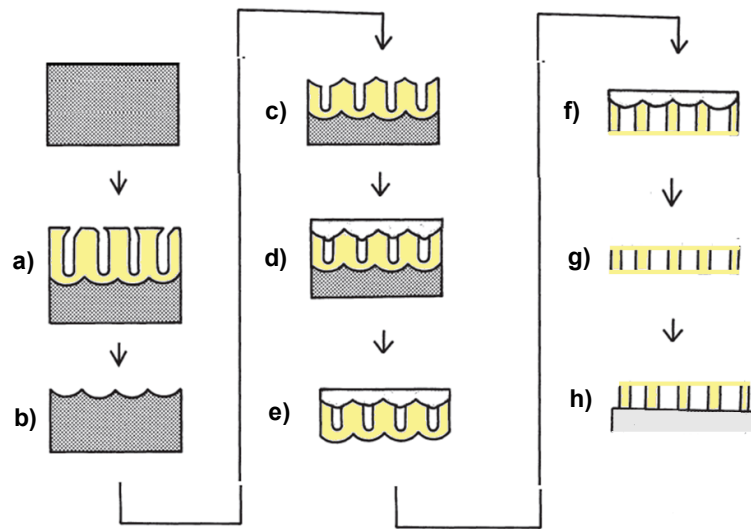


Figura 3.1: Diagrama esquemático de la fabricación de membrana porosa. a) aluminio poroso después de la primera anodización. b) remoción de la capa de aluminio poroso y patrón texturado donde se formaran los huecos en la segunda anodización. c) alumina porosa después de la segunda anodización. d) cubrimiento con capa protectora. e) remoción de capa de Aluminio. f) remoción de la capa de barrera. g) remoción capa protectora. h) transferencia de membrana porosa a sustrato de Si.

Las membranas porosas se fabricaron mediante el doble anodizado de una lámina de Aluminio (99,99 %) de $200 \mu m$, figura 3.1. Para esto, se realiza una primera anodización

a voltaje constante (40V) en una solución ácida a 1°C en un tiempo determinado. De este proceso se obtiene como resultado una alumina porosa (*Anodized Aluminum Oxide* AAO) en la superficie que es consecuencia en parte de la anodización y en parte por el medio ácido, paso (a) de la figura 3.1. Mediante una mezcla de ácidos se remueve la alumina porosa que recién se formó, obteniendo un patrón texturado cóncavo en la superficie del aluminio restante (paso b). Este aluminio texturado es nuevamente anodizado por 5 minutos en condiciones idénticas a las de la primera anodización, obteniendo así una nueva AAO (paso c). En cada marca cóncava que se formó en la primera anodización se nuclea los hoyuelos de la nueva AAO, es decir los sitios cóncavos producto de la primera anodización guían el crecimiento de los nuevos poros columnares, lo que nos indica que el tiempo de la primera anodización es el parámetro que determina el crecimiento de los poros en la membrana.

Como lo que se desea obtener es una membrana porosa de Aluminio con orificios pasantes se deposita sobre la misma una resina con el objetivo de cubrirla y protegerla (paso d). Esto permite eliminar el aluminio que se encuentra en la parte inferior de la barrera (paso e), y la barrera (paso f). Por último se retira la capa protectora (paso g) y la membrana porosa queda lista para ser transferida al substrato (paso h).

En la tabla 3.1, se muestran las 6 membranas fabricadas a las cuales se varió el tiempo de primera anodización desde 6 minutos hasta 8 horas.

Muestra	tiempo de primera anodización (minutos)
M6min	6
M15min	15
M30min	30
M60min	60
M240min	240
M480min	480

Tabla 3.1: Membranas porosas fabricadas mediante el doble anodizado de aluminio con su respectivo tiempo de primera anodización.

3.2. Visualización de membrana porosa

Una vez fabricadas las membranas porosas se procedió a tomar imágenes mediante SEM de la superficie de estas. En la figura 3.2 se observan las micrografías de todas las membranas con distinta magnificaciones. En esta podemos notar que las membranas de aluminio anodizado presenta poros que forman un arreglo periódico tipo hexagonal. Estos arreglos parecen presentar orden de corto alcance ya que están divididos en granos, donde la red hexagonal perfecta de cada grano se encuentra rotada respecto a

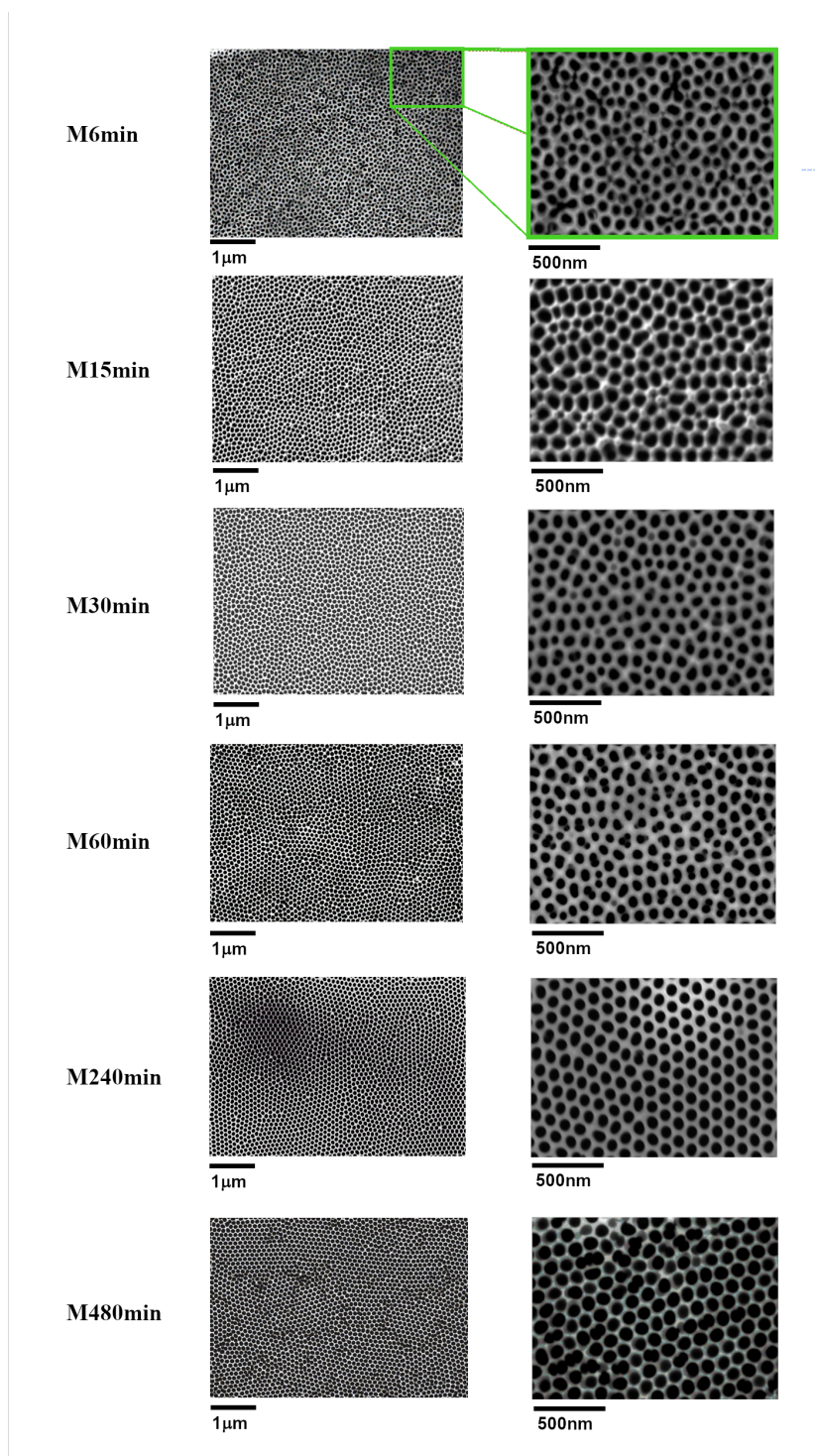


Figura 3.2: imágenes SEM de vista superior de las diferentes membranas porosas crecidas sobre Si antes del depósito de Nb. En la segunda columna se presenta nuevamente una imagen de SEM de la misma muestra con mayor magnificación.

los otros granos.

Muestras similares a las nuestras fueron crecidas por Crabtree, Kwok y Welp [1, 2, 3], quienes usaron la misma técnica de doble anodizado de aluminio para fabricar un arreglo hexagonal de poros, en estos casos perfecto. Dado el tamaño submicrométrico de los poros y el tipo de arreglo de estos, decidieron depositar una película superconductora para luego medir magnetización, logrando observar efectos de conmensuración entre la red de poros fabricada por anodización y la red de vórtices. Si bien las membranas porosas fabricadas en este trabajo no presentan un arreglo periódico perfecto, nosotros decidimos seguir el mismo camino, por lo que se depositó una película superconductora sobre las membranas que presentan cierto grado de desorden con el fin de observar si pese a los efectos del desorden la red de poros sigue comportándose como red de centros de anclaje de vórtices.

3.3. Depósito de la película superconductora

Se depositaron sobre las membranas porosas películas delgadas superconductoras de Nb de 100 nm. Dado que el Nb es un elemento metálico, para su crecimiento se usó una fuente de corriente directa, Sputtering Magnetron DC, con una potencia de 100 W. El gas utilizado para generar el plasma fue Ar a una presión total de 10mTorr.

3.3.1. Determinación de T_c

Cuando un superconductor es enfriado a través de su transición superconductora con un campo pequeño aplicado a la muestra (*Field Cooling* FC), el flujo magnético es expelido del interior del superconductor a una cierta temperatura. Este efecto es conocido como efecto Meissner y la temperatura por debajo de la cual ocurre es la temperatura crítica o T_c . Dicho lo anterior, resulta común medir el efecto Meissner para determinar T_c . Para ello se mide la evolución magnética de la muestra en función de la temperatura, siendo la T_c la temperatura a la cual se observa una caída (recordar que el momento magnético es negativo) en el momento magnético o magnetización.

En la figura 3.3 se puede observar la evolución magnética en función de temperatura de la muestra M240min. La muestra se enfrió sin campo aplicado (zero field cooling, ZFC) y luego aplicando un campo $H=3$ Oe (FC). El criterio utilizado para determinar la temperatura crítica superconductora de las películas delgadas se definió como la temperatura a la cual aparece una señal diamagnética superconductora superpuesta a la señal del sustrato fuera del ruido de medición. En el gráfico 3.3, la T_c está indicada como una flecha azul y su valor es de 8 K. En la tabla 3.2 se expresan los valores de temperatura crítica de todas las muestras. Estos valores son razonables para películas de Nb si consideramos la sensibilidad de la T_c del Nb con impurezas, la cuál de acuerdo

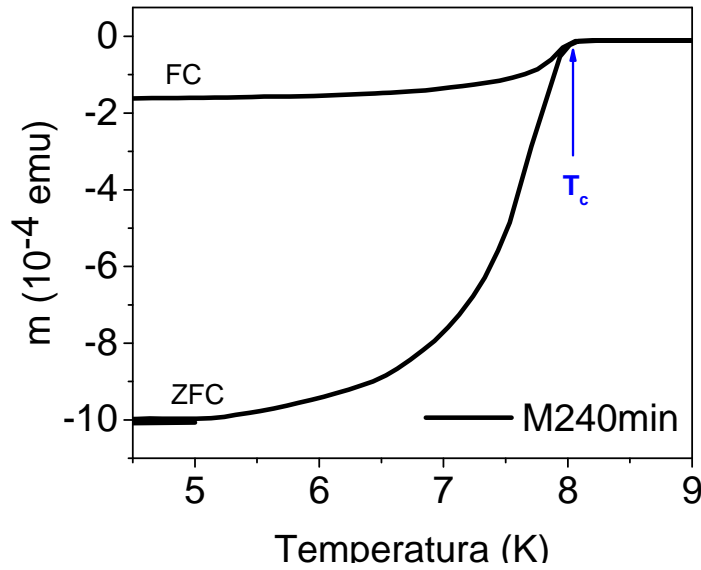


Figura 3.3: evolución del momento magnético en función de temperatura de la película de Nb crecida sobre la membrana porosa fabricada con tiempo de primera anodización igual a 4 horas, M240min. La temperatura crítica superconductora de la película delgada se definió como la temperatura a la cual aparece señal diamagnética.

a Frerichs y Kircher varía desde temperaturas > 4.2 K para películas “sucias” hasta la temperatura crítica del Nb bulto ($\sim 9,26$ K) para películas más puras [57].

Muestra	T_c (K)
M6min	$7,9 \pm 0,1$
M15min	$7,5 \pm 0,1$
M30min	$8 \pm 0,1$
M60min	$8 \pm 0,1$
M240min	$8 \pm 0,1$
M480min	$7,9 \pm 0,1$

Tabla 3.2: Muestras fabricadas con sus respectivas temperaturas de transición superconductora.

3.3.2. Magnetización en función del campo

La curva de magnetización en función del campo para un superconductor tipo II muestra que si aumentamos el campo desde un $H = 0$ hasta un campo H_{c1} , el superconductor se comportará como un superconductor tipo I. Sin embargo, en una situación teórica, cuando H excede H_{c1} la magnetización empieza a decrecer en magnitud debido a la penetración del campo magnético en el material en forma de vórtices. La magnetización seguirá decreciendo hasta un valor de campo magnético llamado campo crítico

superior y denominado H_{c2} . A $H = H_{c2}$ y campos más altos, el material se encuentra en estado normal.

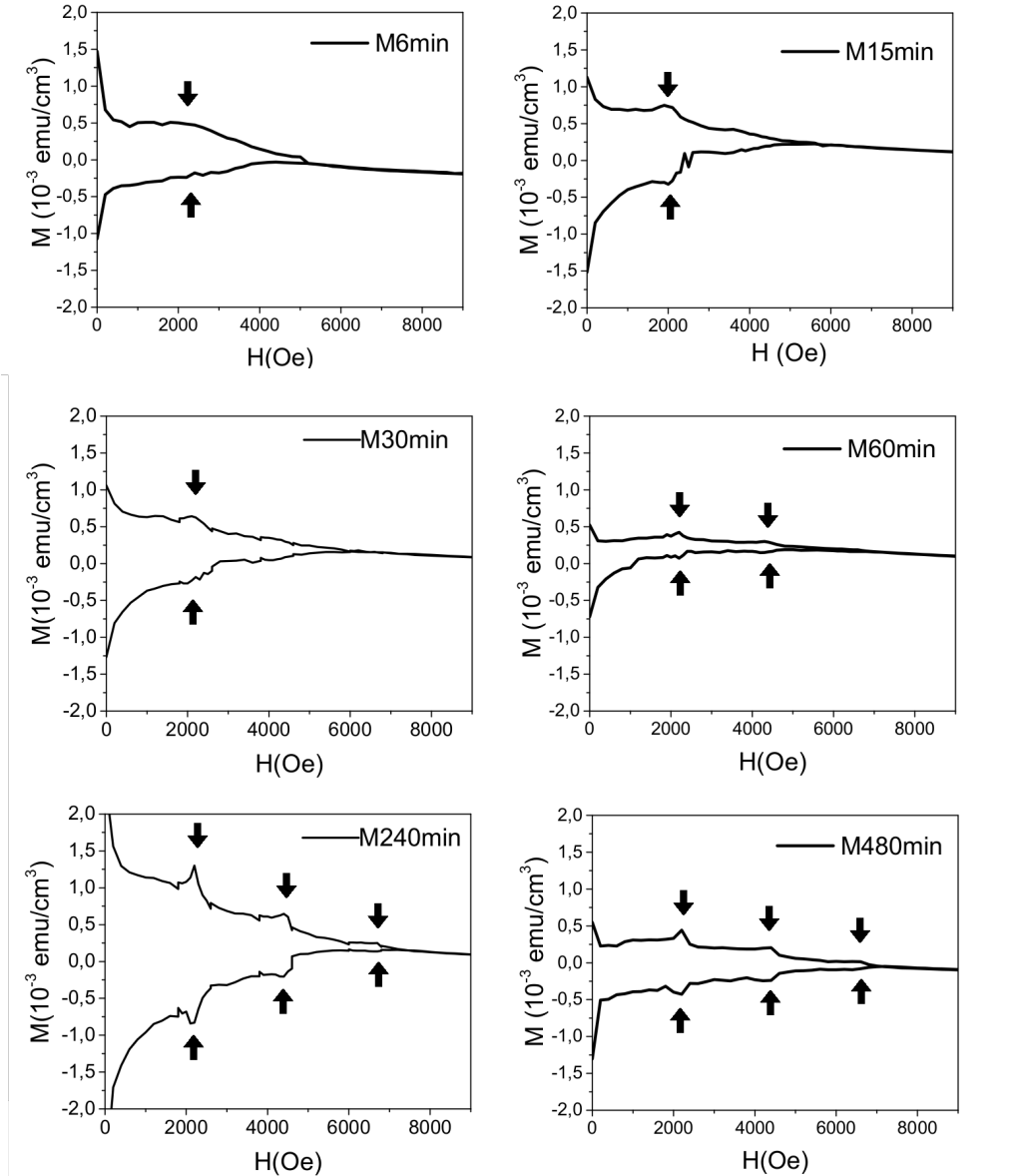


Figura 3.4: Estudio de las propiedades magnéticas de las películas de Nb crecidas sobre las membranas porosas con distinto grado de desorden. $M(H)$ de las seis muestras son para $H > 0$ empezando la medición en todos los casos desde $H < 0$ con $T = 0,8T_c$.

A diferencia de un superconductor tipo II ideal donde $M(H)$ es reversible y la corriente no puede fluir sin disipación por encima de H_{c1} , un superconductor con defectos introducidos presenta histéresis en $M(H)$ y su densidad de corriente crítica (proporcional al ancho entre las ramas de campo ascendente y descendente) es distinta de cero. Esto se debe a que los defectos sirven para anclar las líneas de flujo (vórtices) y por tanto restringir su movimiento. Vale aclarar que es el movimiento de las líneas de flujo lo que por lo general limita la densidad de corriente factible de circular sin disipación.

Dado que el equipo de mediciones magnéticas (SQUID) mide el momento magnético

de la muestra, para determinar la magnetización de la muestra se normalizó dicho momento por las dimensiones de esta. Los substratos de silicio sobre los cuales se depositó la membrana y la película superconductora en todos los casos fue cortado para que midiera $\sim 1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$, y el espesor que se consideró fue el de la película de Nb, $t=100 \text{ nm}$.

En la figura 3.4 se pueden observar los $M(H)$ de todas las muestras a $T = 0,8T_c$ y $H > 0$, en todos los casos se aseguró que las mediciones empezaran con el superconductor en estado crítico. A partir de 3.4 se puede observar que todas las muestras presentan histéresis. La diferencia entre las ramas superior e inferior difiere en cada caso debido a los defectos de la película de Nb [29].

Un aspecto importante que podemos observar en los gráficos de $M(H)$ son los picos en ambas ramas a $H \sim 2200 \text{ Oe}$. Esto se traduce en un aumento de la densidad de corriente crítica, J_c , a dichos campos. La explicación de este suceso podría estar relacionada con el efecto que esperábamos observar, la conmensuración entre la red de poros y la red de vórtices. Cuando el campo aplicado genera un número entero de cuantos de flujo por celda unidad de la red de poros o defectos, se observan picos a dichos campos. Para corroborar si los picos se deben a este efecto es necesario caracterizar las membranas porosas y calcular los campos de conmensuración de nuestras redes de poros, esto nos permitirá corroborar si los picos observados en nuestras medidas se corresponden con los de conmensuración.

3.3.3. Efecto Little-Parks

Como se observó en la figura 3.2 nuestras muestras presentan topología no conexa, por lo que otro efecto que podríamos observar es el efecto Little-Parks. En 1962 William A. Little y Roland D. Parks [58] desarrollaron un ingenioso experimento, en el cual midieron la transición resistiva de un cilindro superconductor de paredes delgadas sometido a un campo magnético axial. Este experimento permitió observar que en lugar de la corriente es el producto $m^* \cdot v_s$, siendo $m^* = 2m$, y m la masa del electrón y v_s la velocidad de supercorriente, el que se encuentra atrapado debido a condiciones externas, lo que claramente demuestra que el fluxoide en lugar del flujo está cuantizado. A partir de lo anterior, se pueden inferir cambios en la temperatura crítica ΔT_c dependiendo del flujo magnético atrapado en el cilindro.

Para entender porqué deberíamos observar este efecto, es necesario recordar que la T_c se ve fuertemente afectada por la energía cinética de los electrones superconductores. Más precisamente, T_c es la temperatura a la cual a un campo fijo la energía libre del estado normal y superconductor es igual. Ahora bien, la energía cinética (E_k) oscila porque al aplicar un flujo magnético E_k presenta un aumento que está asociado a una disminución de T_c . Ya que nuestras muestras presentan un arreglo periódico de

centros de anclaje, cuando el flujo se encuentra atrapado, E_k disminuirá, generando un aumento en T_c . Por lo que la oscilación periódica de la energía cinética y la relacionada oscilación periódica de T_c podrían ser observadas en nuestras muestras.

En la figura 3.5 se pueden observar mediciones de T_c a distintos campos para tres de las muestras, M6min, M60min y M480min. Si bien en la muestra con menor tiempo de anodización (M6min) no se observan oscilaciones, las dos muestras con mayor tiempo de primera anodización sí presentan oscilaciones de T_c con períodos de ~ 2200 Oe.

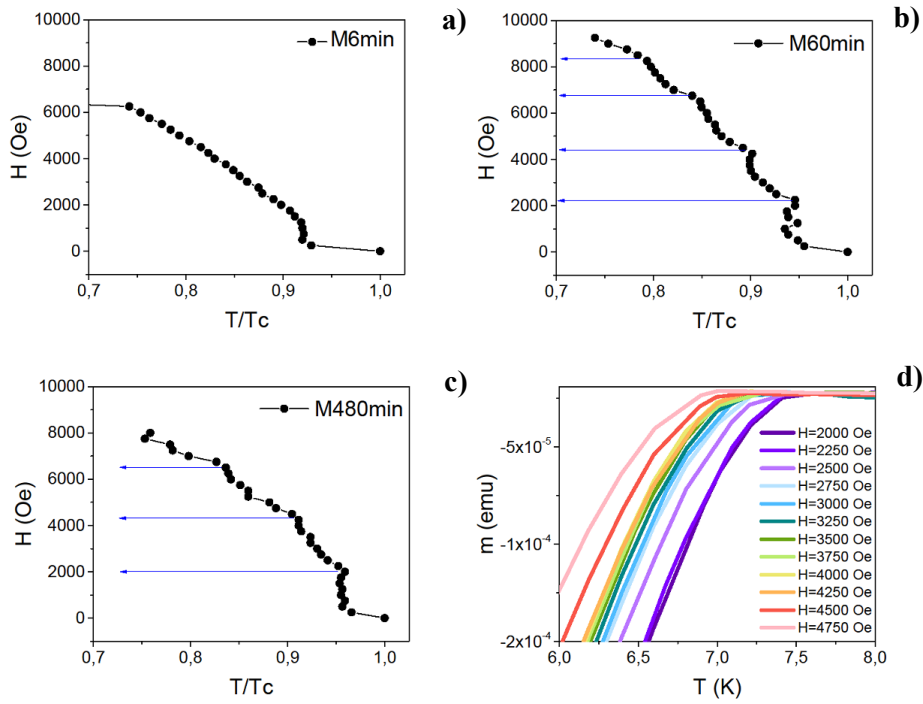


Figura 3.5: a, b y c) Gráficos de T_c en función del campo de las muestras M6min, M60min y M480min respectivamente. d) Curvas de momento magnético en función de temperatura para la muestra M60min a diferentes campos, en esta se puede observar como la T_c de la muestra oscila con campo. En la muestra con menor tiempo de anodización no se observa el efecto Little-Parks

A partir del campo en el cual se observan las oscilaciones de T_c se puede determinar el radio por el cual circula la corriente, definido como $R = \sqrt{\frac{n\Phi}{\pi H_n}}$ [29], donde n define el número de la oscilación y H_n es el campo al cuál se observa dicha oscilación. En la tabla 3.3 se muestra el R obtenido para $n=1$.

Muestra	H (Oe)	$R_{L-P}(nm)$
M6min	-	-
M60min	~ 2200	~ 55
M480min	~ 2100	~ 56

Tabla 3.3: Radio por el que circula la corriente obtenido a partir de mediciones de T_c vs. H.

Más adelante, en la sección 3.3.2, podremos notar que el radio por el cual circula

la corriente es del mismo orden que el radio de los poros.

3.4. Caracterización de las membranas porosas

Con el fin de confirmar nuestra presunción de que la presencia de picos en $M(H)$ se debe a la conmensuración entre los centros de anclaje y la red de vórtices, para entender porqué algunas muestras presentan picos a varios campos en los $M(H)$ y porqué en algunas muestras se observa el efecto Little-Parks y en otras no, es necesario caracterizar la red de vórtices. Dado que la longitud de penetración efectiva en películas superconductoras es usualmente mayor debido a la geometría, no es posible decorar exitosamente vórtices. Bajo la hipótesis que cada poro genera un centro de anclaje donde se ubicarán los vórtices y bajo la hipótesis que se discutirá en la sección 3.6.1 de que en cada poro habrá un vórtice, caracterizaremos los parámetros de desorden de la red de poros como si fueran los de la red de vórtices.

En la figura 3.6 se muestran dos micrografías de la muestra M240min antes (panel izquierdo) y después (panel derecho) del depósito de una película Nb de 100 nm. En ambas se puede observar la presencia de “huecos”. En el caso de la membrana sobre la cual se depositó la película de Nb estos “huecos” están parcialmente rellenos con material superconductor. Ya que ambos sistemas presentan topografías similares, observando un mejor contraste en la membrana antes del depósito, decidimos hacer la caracterización de las muestras directamente sobre las imágenes de SEM de las membranas porosas antes del depósito de Nb.

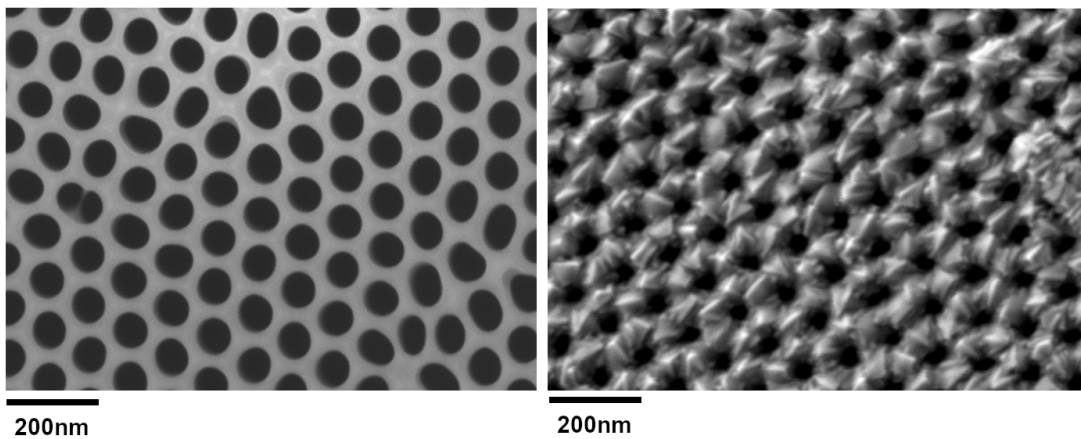


Figura 3.6: imágenes SEM de vista superior de la muestra M240min, antes (izquierda) y después (derecha) del depósito de Nb. El área de las dos tomografías no coincide. Las regiones oscuras son los huecos en los poros de la membrana y la región gris es la membrana en el caso del panel izquierdo y el Niobio depositado sobre dicha membrana en el panel derecho.

Las imágenes de SEM de las membranas como las mostradas en la figura 3.2 fue-

ron procesadas mediante el uso de dos paquetes de software. El software MIST [59], desarrollado en la Universidad de California San Diego permitió obtener el diámetro promedio, el histograma de número de primeros vecinos y la función de correlación de pares de la red de poros, mientras que el software desarrollado en el grupo de Bajas Temperaturas por la Dra Yanina Fasano y su grupo de trabajo, permitió obtener la triangulación de Delaunay, la transformada de Fourier, el parámetro de red, la función de distribución de pares y la función de correlación orientacional de la red de poros. A continuación se discutirán los resultados obtenidos en mayor detalle.

3.4.1. Número de primeros vecinos

La determinación del número de primeros vecinos de los poros en la membrana se hizo de dos formas. La primera fue mediante el software MIST que arroja el histograma de primeros vecinos y la segunda mediante el protocolo conocido como “triangulación de Delaunay” [60]. Ambos métodos arrojan resultados similares, ver figura 3.7.

El algoritmo de triangulación de Delaunay consiste en tomar ternas de poros no alineados y determinar la circunferencia que los circunscribe. Si dentro de dicha circunferencia no se encuentran más de tres poros, la terna es de primeros vecinos.

Una vez determinado el número de primeros vecinos de un poro, si éste es distinto de seis es identificado como perteneciente a un defecto topológico. Ya que no es nuestro interés ahondar en la variedad de defectos topológicos de la estructura de poros, sólo diferenciaremos entre los casos en que el número de vecinos es igual o distinto de 6.

En la segunda columna de la figura 3.7 se muestran los resultados obtenidos de la triangulación de Delaunay, donde los puntos indican las posiciones de los poros. Además, se muestran los enlaces entre primeros vecinos, obteniéndose un mapa de triángulos con los poros ubicados en sus vértices. Si el número de triángulos que se tocan en un vértice común es distinto de seis, significa que el poro ubicado en tal vértice es un defecto topológico de la estructura. En este caso tales triángulos son identificados en color azul (poros en rojo). Para el caso en que el número de triángulos que se tocan en un vértice sea seis, los triángulos son identificados con color blanco (poros en negro).

La triangulación de Delaunay también permite observar los bordes de grano, que se detectan como aglomeraciones en contornos de dislocaciones de borde que separan regiones con distinta orientación cristalina.

De la figura 3.7 se puede discernir que las muestras con menor tiempo de anodización muestran una mayor dispersión en el número de primeros vecinos. A medida que aumenta el tiempo de anodización se observa que el número de primeros vecinos es mayormente 6, hecho que se espera para una red triangular. Además se puede observar que tiempos de anodización mayores resultan en granos más grandes.

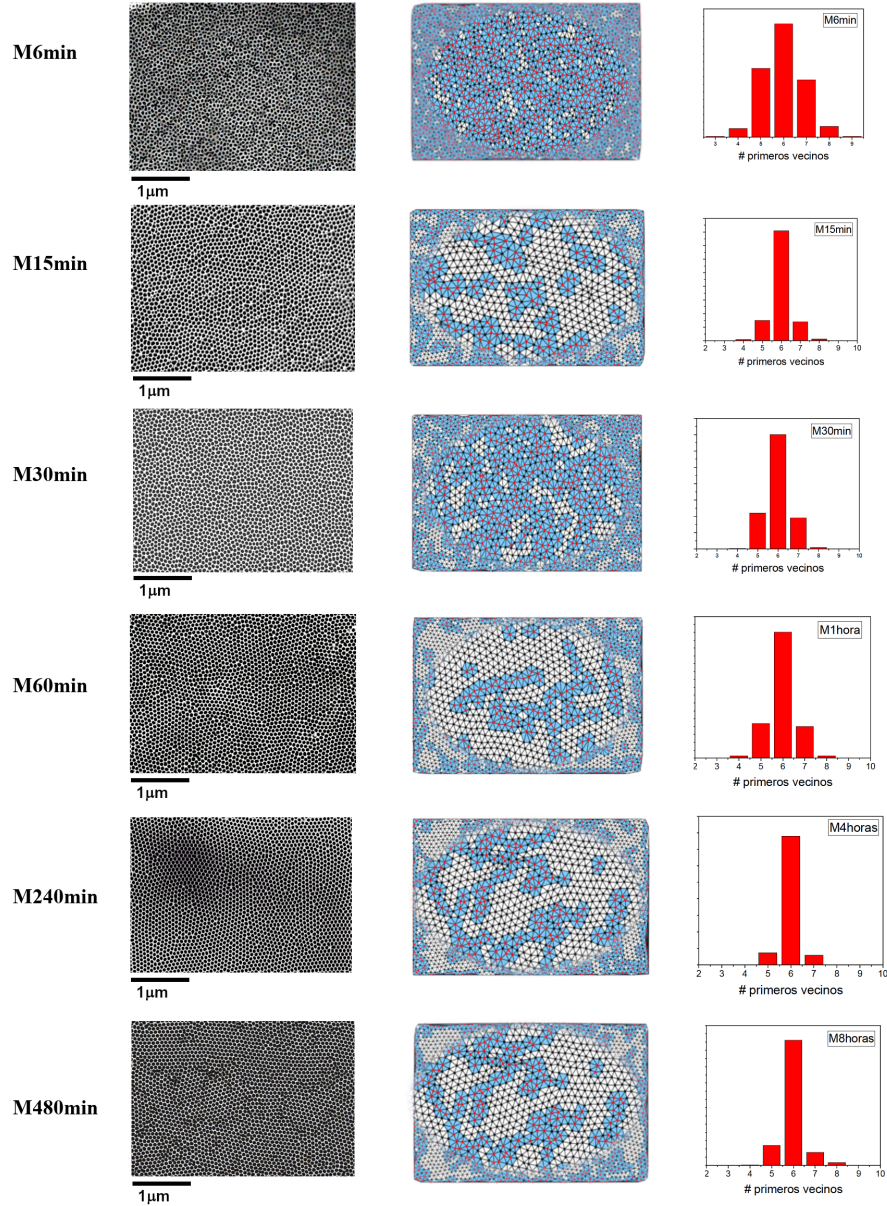


Figura 3.7: Análisis del número de primeros vecinos de las membranas porosas. Primera columna (izquierda): imagen de SEM de vista superior de la membrana porosa. Segunda columna: transformada de Delaunay calculada a partir de la imagen de SEM de la primera columna. Tercera columna: histogramas de primeros vecinos calculado a partir de la imagen de SEM de la primera columna. En las imágenes de la transformada de Delaunay, si el número de triángulos que se tocan en un vértice común es distinto de seis, significa que el poro ubicado en tal vértice es un defecto topológico de la estructura. En este caso tales triángulos son identificados en color azul (poros en rojo). Para el caso en que el número de triángulos que se tocan en un vértice es seis, los triángulos son identificados con color blanco (poros en negro).

3.4.2. Diámetro, densidad de poro, parámetro de red de la red de defectos y tamaño de grano

Dos parámetros importantes que permiten calcular el campo de conmesuración son la densidad de poros y la distancia entre estos. En la tabla 3.4 se muestran estos dos parámetros junto con el diámetro de poros y el tamaño de poro obtenidos del procesamiento de las imágenes SEM.

Muestra	Diámetro poros (nm)	Densidad de poros ($N_p/\mu m^2$)	Parámetro de red (nm)	Tamaño de grano (parámetro de red)
M6min	49 ± 50	200	85	-
M15min	73 ± 13	102	113	10-16
M30min	70 ± 8	108	110	-
M60min	71 ± 12	106	110	10-21
M240min	73 ± 5	108	109	10-35
M480min	83 ± 7	112	109	10-44

Tabla 3.4: Parámetros obtenidos del procesamiento de las imágenes de SEM de las membranas porosas: diámetro de poros, densidad de poros, parámetro de red y tamaño de grano.

Si comparamos los diámetros entre las distintas muestras podemos señalar que todas las muestras presentan un diámetro de poros similar, excepto la muestra M6min que presenta una alta dispersión. Lo mismo ocurre para la densidad de poros N_p y el parámetro de red a , similares para todas las muestras $N_p \sim 100 \text{poros}/\mu m^2$ y $a = 110 \text{nm}$, excepto para la muestra con menor tiempo de anodización, M6min. Este hecho puede deberse a que un menor tiempo de primera anodización en la fabricación de la red de poros puede generar una mayor concentración de sitios cóncavos que guían el crecimiento de los poros. Dado que el área es la misma en todas las muestras, 1cm^2 , un aumento en N_p podría estar asociado a un menor diámetro de poro y un menor parámetro de red, hecho que se ve reflejado en la tabla 3.4.

Vale la pena aclarar que si bien la muestra M6min presenta una mayor densidad de poros, esto no necesariamente significa el anclaje de una mayor densidad de vórtices. Si recordamos lo anteriormente mencionado en el capítulo de introducción, hay una fuerza de interacción entre vórtices de carácter repulsivo que empieza a ser significativa a distancias entre vórtices pequeñas. El aumento de esta fuerza está directamente relacionado con un aumento en la energía del sistema. Por lo tanto es muy probable que los vórtices prefieran no ocupar las posiciones de poros que se encuentran muy próximos entre sí con el fin de minimizar la energía.

Otro parámetro que se presenta en la tabla 3.4 es el rango de tamaño de granos observado en cada una de las redes. Dado que los granos no presentan una forma regular, se estimó el tamaño de estos a partir de las imágenes de transformada de

Delaunay considerando como granos las regiones sin defectos (zonas blanca) rodeadas por regiones con defectos (zona azul) en las cual el ángulo de orientación se mantiene. La muestra M6min y M30min no presentan granos. Entre las muestras que sí presentan granos se puede observar una tendencia, un mayor tiempo de anodización genera granos de mayor tamaño.

3.4.3. Análisis de la función de distribución de pares y función de correlación orientacional de la estructura de poros

Cuantificar el grado de orden de la estructura de poros es posible mediante la función de distribución de pares y la función de correlación. El principio básico sobre el cual se basa el cálculo de estas funciones consiste en comparar dos zonas de la estructura y determinar la correlación o similitud entre ambas. Esta comparación se realiza variando la separación \vec{r} entre dos zonas. Los criterios utilizados para cuantificar el grado de similitud entre dos zonas de la estructura se describen en las siguientes secciones.

La función de distribución de pares y función de correlación orientacional se calculan mediante el software desarrollado en el laboratorio de Bajas Temperaturas y fueron introducidas por Nelson y Halperin [61]. La función de distribución de pares, $g(r)$, cuantifica la variación de la densidad como función de la distancia medida desde una partícula de referencia para las tres direcciones principales de la estructura. La función de correlación orientacional, $G6(r)$, determina la evolución con la distancia de la orientación relativa de la celda unidad para una red hexagonal. Si ambas zonas son idénticas la correlación es uno y si son completamente distintas no existe correlación entre ambas y su valor es nulo.

Función de distribución de pares de partículas

La función de distribución de pares de partículas, $g(r)$, es una buena función para caracterizar el orden topológico de una estructura. Esta puede ser definida como la probabilidad de encontrar una partícula (o poro en nuestro caso) a una distancia \vec{r} de una partícula (poro) ubicada en el origen de coordenadas.

Para calcular la función g de una dada configuración espacial de poros se elige un sistema de coordenadas de manera que un poro, denominado 0, se encuentra en el origen. Es necesario aclarar que la ubicación de los poros es puntual. Luego, se cuenta el número de poros en un volumen dV a una distancia \vec{r} del poro 0. Este mismo procedimiento se realiza ubicando en el origen de coordenadas el resto de los poros. Sumando todas estas cantidades y dividiendo por $\rho_p dV$ (ρ_p es la densidad de poros) se obtiene la función $g(r)$ de la estructura. En un sistema sin correlación espacial entre partículas, como por ejemplo en un gas ideal, la función $g(r) \rightarrow 1$, es decir es

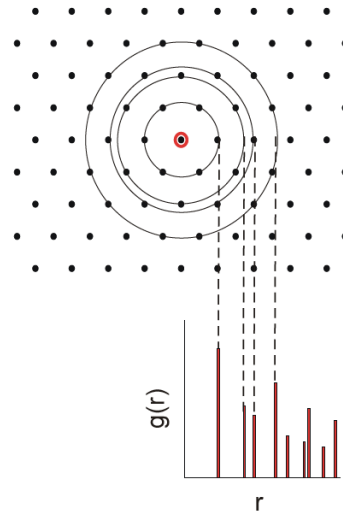


Figura 3.8: Función de distribución de pares, $g(r)$, de una estructura cristalina con simetría hexagonal. Imagen tomada de [62].

independiente de \vec{r} [62].

Muestra	r/a al cual $g(r) \rightarrow 1$	r/a al cual $G_6 \rightarrow 0$
M6min	1,5	2,6
M15min	5,8	10.1
M30min	4,8	7.4
M60min	7,2	11.5
M240min	> 8	14.2
M480min	> 8	14.5

Tabla 3.5: Radio al cual $g(r) \rightarrow 1$ o distancia de orden longitudinal y radio al cual $G_6 \rightarrow 0$ o distancia de orden orientacional. El radio está normalizado por el parámetro de red.

En la figura 3.8 se puede ver la función $g(r)$ para una red hexagonal perfecta, mientras que en la figura 3.9 se muestra la $g(r)$ de las membranas porosas. El hecho de que las membranas porosas presenten fluctuaciones de las posiciones de los poros con respecto a la red hexagonal ideal se evidencia en un ensanchamiento de las deltas de Dirac mostradas en la figura 3.8. A distancias muy grandes la superposición de los picos hace que $g(r)$ tienda a 1 independientemente de \vec{r} . Esto se debe a que, por más pequeños que sean los desplazamientos con respecto a la red ideal, la posición de los poros está peor definida a medida que r aumenta. Se define el rango de orden de una estructura [63] como el valor de r en el que $g(r) \rightarrow 1$. En la figura 3.9 este valor está indicado como una línea vertical para todas las muestras excepto la muestra M240min y M480min que parecen tender a 1 para $r/a > 8$. Dado que la muestra M6min sólo presenta un máximo en $g(r)$ podemos concluir que esta muestra no presenta orden traslacional.

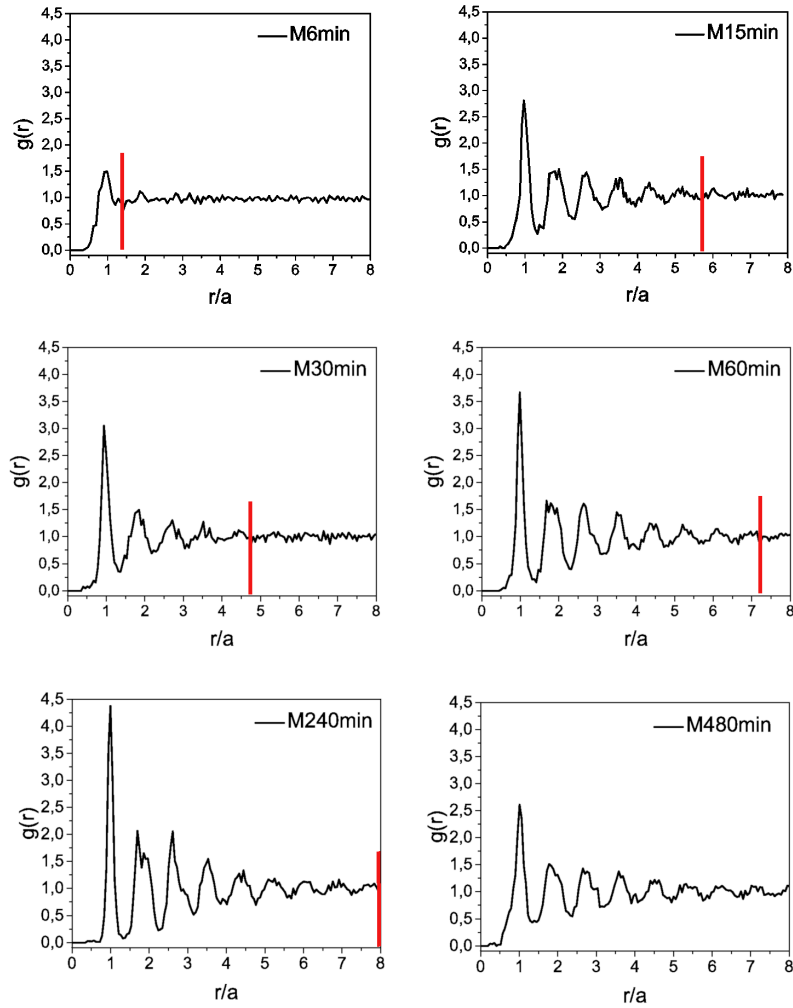


Figura 3.9: Función de distribución de pares de las redes de poros. El rango de orden se define como el valor de r en el que $g(r) \rightarrow 1$, este valor está indicado como una línea vertical roja para todas las muestras excepto la muestra M240min y M480min que parecen tender a 1 para $r/a > 8$

En la tabla 3.5 se muestra el valor de r/a al cual $g(r) \rightarrow 1$, a esta distancia le llamaremos distancia de orden longitudinal. Como se puede observar, un mayor tiempo de anodización indica correlaciones espaciales a radios mayores en todos los casos excepto para la muestra M15min que decae a 1 a un radio mayor que la muestra que le sigue en tiempo de anodización (M30min).

Función de correlación orientacional

La función orientacional, $G_6(r)$ se define a partir del parámetro de orden orientacional

$$\Psi_6(r = r_l) = (1/n) \sum_{m=1}^n e^{i6\theta_{lm}}, \quad (3.1)$$

que cuantifica el apartamiento de los n vecinos de un poro central ubicado en la posición r_l respecto de las direcciones principales de un hexágono perfecto. La fase θ_{lm} es el ángulo formado entre las direcciones determinadas por el punto central y el vecino m y el $m + 1$. La función de correlación orientacional se calcula realizando el promedio tomando como origen a todos los poros de la imagen y cuantifica la orientación relativa entre primeros vecinos en función de la distancia \vec{r}

$$G_6(r) = \langle \Psi_6(0) \Psi_6^*(r) \rangle. \quad (3.2)$$

La figura 3.10 muestra la función $G_6(r)$ de todas las membranas. El valor r/a al cual la función decae a cero y que nos permite determinar el orden de la estructura está representado por una línea vertical roja en la figura 3.10 y especificado en la tabla 3.5, a partir de ahora se hará referencia a esta distancia como distancia de orden orientacional. Como se puede observar, este valor aumenta a medida que se incrementa el tiempo de anodización durante la fabricación, hecho que también se observó para la distancia de orden longitudinal. Si comparamos estas dos magnitudes podemos notar que la distancia de orden orientacional es mayor que la distancia de orden longitudinal en todos los casos por un factor cercano a dos, es decir la distorsión orientacional ocurre en longitudes del orden del doble respecto a la distorsión compresiva.

A partir de la función $G_6(r)$ también es posible determinar el tipo de orden estructural, es decir se puede determinar si el orden orientacional es de largo, medio o corto alcance. Para ello es necesario determinar como decae la función $G_6(r)$.

Una estructura con orden orientacional de largo alcance presenta una $G_6(r)$ que oscila en torno a un valor finito para r chicas y satura a un valor no nulo a r grandes. Para el caso de una red hexagonal perfecta el valor de saturación es 1, mientras que para una estructura que presenta una dirección principal bien definida a grandes distancias, pero con fluctuaciones en la orientación aleatorias y pequeñas, este valor es menor a uno.

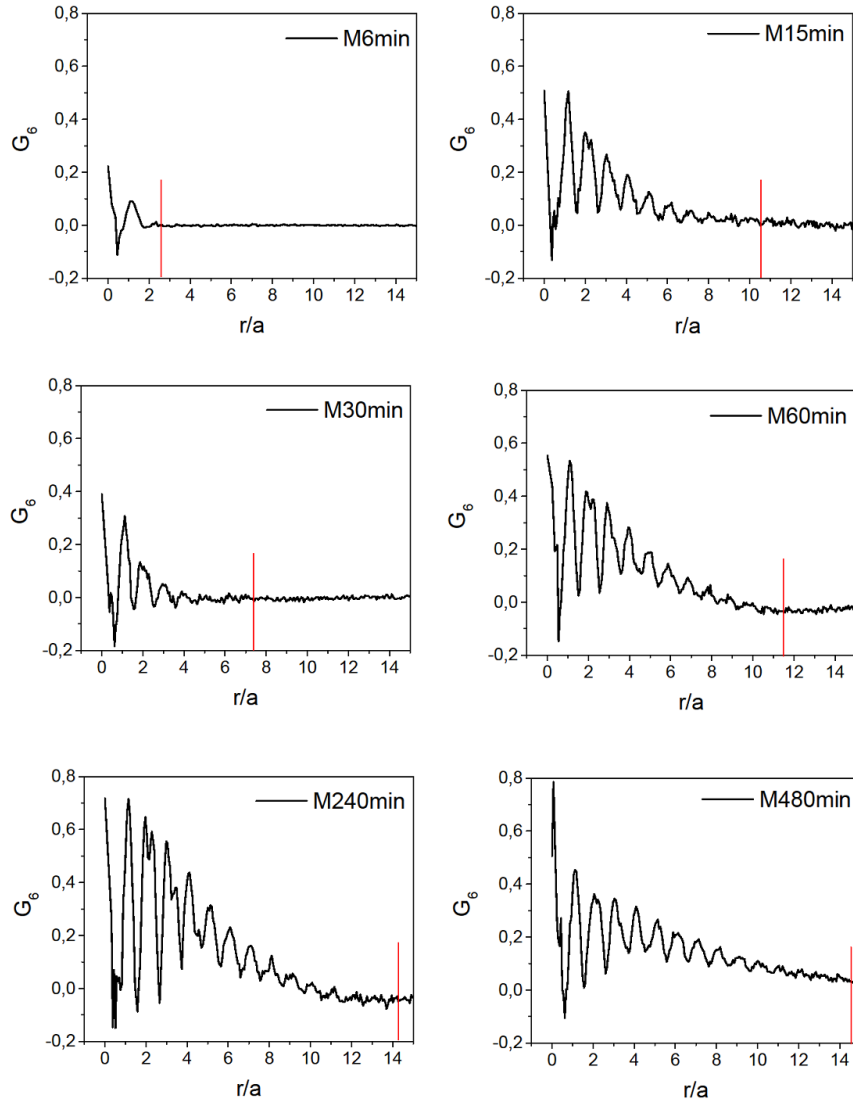


Figura 3.10: Función de correlación orientacional de las redes de poros. El rango de orden puede ser definido como el valor de r en el que $G_6 \rightarrow 0$, este valor está indicado como una línea vertical roja para todas las muestras

En la situación intermedia se encuentran las estructuras con orden orientacional de casi largo alcance, en las cuales $G_6(r)$ decrece algebraicamente con la distancia. En este caso la estructura podría ser tal que la dirección de orientación cambia lentamente en función de la distancia. El último caso sería cuando $G_6(r)$ decae a cero de forma exponencial, entonces se dice que la estructura presenta orden orientacional de corto alcance. Este tipo de orden puede ser tal que a cortas distancias la dirección de orientación de la estructura cambie abruptamente en un ángulo considerable, como en el caso de bordes de grano.

De la figura 3.10 podemos observar que $G_6(r)$ para todas las muestras oscila en torno a un valor finito para r/a chicas y satura en 0 para r/a grandes. Si además

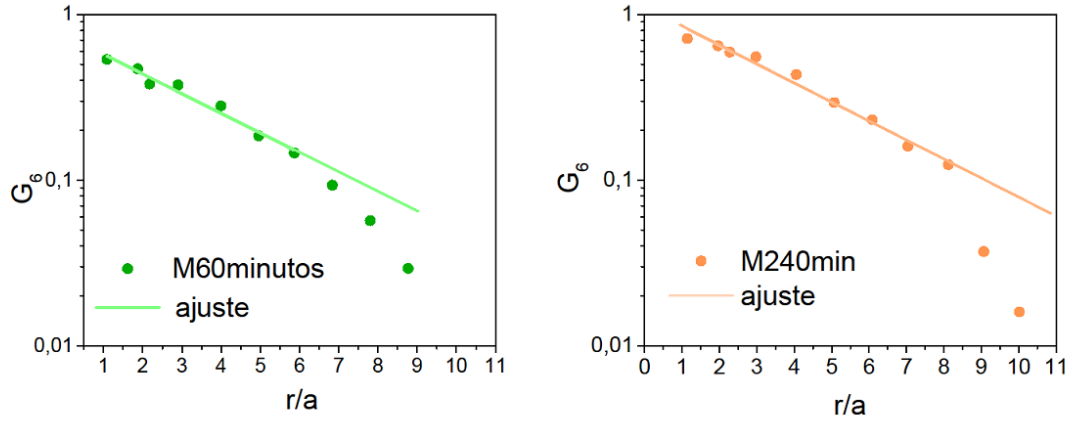


Figura 3.11: Función correlación orientacional de la muestra M60min (panel izquierdo) y de la muestra M240min (panel derecho). Los círculos indican los máximos de la función $G_6(r)$, y la línea señala el ajuste realizado a r/a pequeños. Como se puede observar $G_6(r)$ decae a cero de forma exponencial hasta $r/a=6$ en el caso de la muestra M240min y hasta $r/a=8$ en el caso de la muestra M240min. Este comportamiento indica que la estructura de poros tiene un orden orientacional de corto alcance. Una posible explicación del porqué a r/a grandes la función decae más rápido que exponencial podría estar relacionada con el tamaño de grano.

observamos la figura 3.11, donde los puntos indican los máximos de $G_6(r)$ de la muestra M60minutos (panel izquierdo) y M240min (panel derecho) respectivamente, podemos notar que ambas funciones decaen de forma exponencial para longitudes r/a pequeñas, lo cual señala que la estructura de poros tiene un orden orientacional de corto alcance. Si bien para longitudes mayores ($r/a > 6$ en el caso de la muestra M60min y $r/a > 8$ para la muestra M240min) el decaimiento es más rápido que exponencial, esto puede estar relacionado con el tamaño de grano. Vale la pena aclarar que un decaimiento tipo exponencial fue observado en todas las muestras.

3.5. Resumen de la caracterización de membranas porosas

Resumiendo los resultados de caracterización podemos decir que la muestra fabricada con menor tiempo de primera anodización, M6min no presenta orden alguno, por lo que cuando se hable de la muestra desordenada se estará haciendo referencia a esta muestra. Respecto a las membranas fabricadas con tiempo de anodización $t_{anod} > 6min$ podemos decir que estas presentan estructura policristalina con orden orientacional de corto alcance, donde un mayor tiempo de anodización significa un decaimiento en las funciones de correlación a parámetros de red más grande, además de una estructura con granos y poros más grandes y una menor dispersión en el número de primeros vecinos y diámetro de poros, es decir aumentar el tiempo de primera anodización durante

la fabricación significa una red de poros con características más similares a una red hexagonal perfecta.

Resulta conveniente aclarar que en toda la caracterización se observó que la muestra M15min presenta un comportamiento fuera de la sistemática. Esto se evidencia al comparar la caracterización de número de primeros vecinos, función de distribución de pares y función de correlación orientacional, de esta muestra y la muestra que le sigue en tiempos de primera anodización (M30min) donde M15min presenta características más similares a una red hexagonal perfecta que M30min.

Al comparar la longitud de orden de alcance traslacional con la longitud de orden orientacional (Tabla 3.5) podemos notar que la distorsión orientacional ocurre en longitudes del orden del doble respecto a la distorsión compresiva.

3.6. Relación entre las características de las membranas porosas y las propiedades superconductoras de la película de Nb crecida sobre estas

3.6.1. Cálculo del campo de conmensuración

Una vez caracterizadas las redes de defectos y obtenidos parámetros como la densidad de poros y el parámetro de red podemos verificar si los campos a los cuales se observan picos en el $M(H)$ se corresponden con los campos de conmensuración. Para confirmar esta presunción se calculó el primer campo de conmensuración o “matching field” mediante dos métodos. El primero consiste en calcular el campo de conmensuración mediante la ecuación 1.9 reemplazando el parámetro de red que obtuvimos durante la caracterización de la membrana y suponiendo que el área de la celda unidad de la red de centros de anclaje es igual al área de una celda unidad de un arreglo triangular perfecto. El segundo fue calculado bajo la presunción que en cada poro hay un vórtice, entonces el $H_{\phi 1}$ será igual a la densidad de poros multiplicada por el flujo magnético, ecuación 3.4.

$$H_{\phi 1} = \frac{2\phi_0}{\sqrt{3}a^2} \quad (3.3)$$

$$H_{\phi 1*} = N_p \cdot \phi_0 \quad (3.4)$$

Los valores obtenidos se muestran en la tabla 3.6. Pese a que los valores se superponen por la incerteza, pareciera que el cálculo de $H_{\phi 1}$ es consistentemente menor que el $H_{\phi 1*}$ y que los resultados experimentales, esto puede deberse a que $H_{\phi 1}$ considera un arreglo triangular perfecto por lo que la ecuación 3.4 describiría mejor los resultados.

La muestra desordenada que como es de esperarse no presenta picos en los $M(H)$ a ningún campo.

Muestra	$H_{\phi 1}$ (Oe)	$H_{\phi 1}^*$ (Oe)	$H_{\phi 1}$ experimental(Oe)
M6min	3300 ± 500	4100 ± 200	*
M15min	1800 ± 300	2100 ± 100	~ 2000
M30min	1900 ± 300	2200 ± 90	~ 2100
M60min	2000 ± 300	2200 ± 80	~ 2200
M240min	2000 ± 300	2300 ± 60	~ 2200
M480min	2000 ± 300	2300 ± 100	~ 2200

Tabla 3.6: Campos de conmesuración de las muestras calculados a partir de la ecuación 3.3 y 3.4. * En la muestra M6min no se observan picos en el gráfico M vs. H, debido a que la muestra no presenta orden alguno.

Para entender qué ocurre si aumentamos el campo por encima del primer campo de conmesuración, es decir discernir si los vórtices adicionales ocupan multiplemente los poros o si ocupan otras posiciones dejando un sólo vórtice por poro, es necesario estimar el límite de ocupación de los poros. Se ha demostrado [64] que un arreglo triangular (caso más similar a nuestro arreglo) aceptará 2 vórtices/poro si se cumple la condición $d^3 > 8\xi a^2$, donde d es el diámetro de los poros, a es el parámetro de red y ξ es la longitud de coherencia. Si realizamos los cálculos para nuestras muestras con los valores de d y a que se muestran en la tabla 3.4 y usamos el valor de longitud de coherencia obtenido en la sección 1.5, $\xi \sim 12nm$, podemos notar que la condición no es satisfecha, lo que implica que sólo un vórtice puede ocupar un poro. Es decir, por encima del primer campo de conmesuración aparecerán vórtices intersticiales que coexistirán con los vórtices atrapados en los poros.

La configuración de los vórtices intersticiales y los atrapados en los poros esta determinada por la interacción entre vórtices, donde los vórtices ubicados en las posiciones intersticiales sienten un potencial creado por los vórtices atrapados en los poros. El mínimo de potencial está ubicado en los centros del triángulo equilátero formado por los poros [1]. Hay dos posiciones intersticiales naturales por celda primitiva del arreglo de poros mostrado en la figura 3.12. Uno de estos sitios será ocupado para $H = H_{\phi 2} = 2H_{\phi 1}$ produciendo un arreglo simétrico de 3 vórtices intersticiales separados 120° de cada poro. El segundo sitio intersticial es ocupado para $H = H_{\phi 3} = 3H_{\phi 1}$ completando el patrón hexagonal conmensurado con el patrón de poros. A campos más altos, la energía mínima de posibles configuraciones intersticiales ajusta de manera menos natural con el patrón hexagonal y es mucho menos estable.

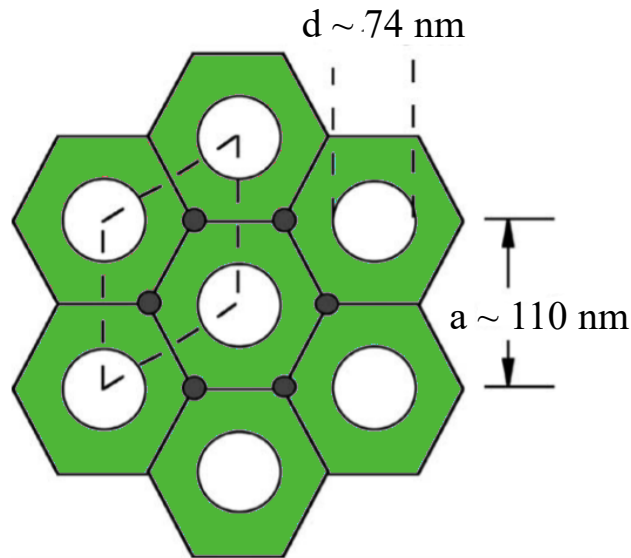


Figura 3.12: Arreglo hexagonal con las posiciones de los mínimos de potencial generados por los vórtices atrapados en los poros. Figura tomada de [1].

3.6.2. Efectos de desorden de la red de poros sobre el anclaje de vórtices

Si analizamos los gráficos de magnetización en función del campo, medido a la misma temperatura reducida ($T = 0,8T_c$), figuras 3.4 y 3.13 podemos decir que si bien el pico observado a campos más bajos ocurre en el mismo valor de campo para todas las muestras $H_{\phi 1} \sim 2200$ Oe, la definición, intensidad y periodicidad de dicho pico no es equivalente entre muestras. Un pico más definido e intenso se observa sólo en las muestras con mayor tiempo de primera anodización (M240min y M480min). En cuanto a la periodicidad de estos picos, podemos notar en el gráfico 3.14 que sólo las dos muestras con mayor tiempo de primera anodización (M240min y M480min) presentan tercer campo de conmensuración. Es decir, un menor tiempo de primera anodización, que significa una muestra más desordenada, conlleva a un anclaje más débil.

Para entender porqué el desorden en la red de defectos afecta la fuerza de anclaje de los vórtices conviene entender cuáles son los mecanismos que afectan dicha fuerza.

Uno de los mecanismos que afecta directamente el anclaje de vórtices es la interacción entre estos. Cuando la distancia entre defectos de la red subyacente es menor que la longitud de penetración, $a < \lambda$ la fuerza de repulsión entre vórtices aumenta. Esto puede llevar a que los vórtices prefieran no ubicarse en un centro de anclaje si la

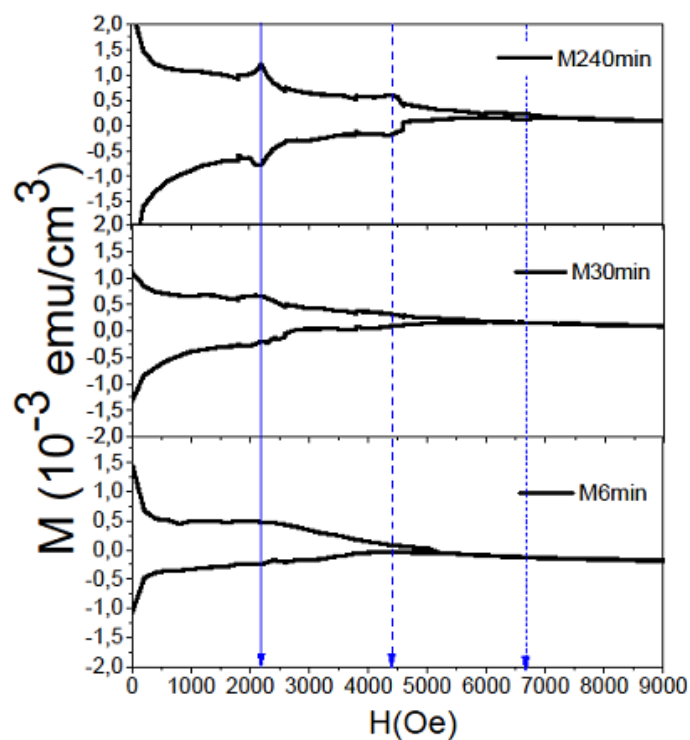


Figura 3.13: Comparación de los $M(H)$ de la muestra M6min, M30min y M240min. Las líneas azules indican los campos a los cuáles se debería observar el primer, segundo y tercer campo de conmensuración.

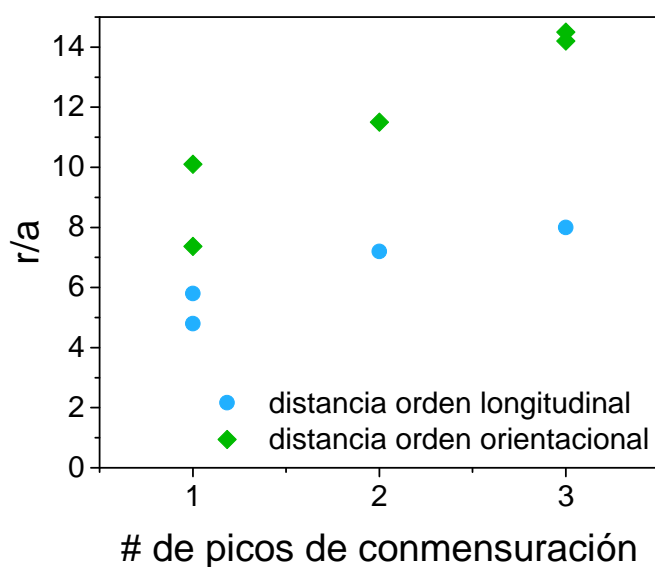


Figura 3.14: Distancia de orden longitudinal y de orden orientacional obtenida a partir de la función de distribución de pares y función de correlación orientacional graficada en función del número de picos de conmensuración observado en los gráficos de $M(H)$

distancia entre este y su vecino inmediato significa un aumento en la energía. En la sección anterior se pudo observar que la muestra crecida con menor tiempo de anodización M6min presenta un parámetro de red y un diámetro de poro menor. Es por esto que en los gráficos $M(H)$ el anclaje más débil es observado en esta muestra.

Otro parámetro que afecta el anclaje de las líneas de flujo es la conmensuración entre la red de defectos y la red de vórtices, dado que los vórtices penetran en el superconductor formando una estructura hexagonal, se puede esperar que la red de defectos subyacente con características más similares a la red de vórtices presente una mayor conmensuración. En este caso las muestras fabricadas con mayor tiempo de primera anodización presentan un mayor ordenamiento posicional y orientacional por lo que es razonable que el anclaje en las muestras con mayor tiempo de anodización sea más fuerte.

3.6.3. Efectos de temperatura en la fuerza de anclaje

Las curvas de magnetización también fueron medidas a distintas temperaturas reducidas, $T/T_c = 0.8, 0.75$ y 0.68). En el panel izquierdo de la figura 3.15 se puede ver el $M(H)$ a distintas temperaturas de la muestra M240min, mientras que en el panel derecho se observa la densidad de corriente crítica para el primer campo de conmensuración de la muestra M30min y M240min. Como es de esperarse a temperaturas más altas la densidad de corriente crítica (J_c) es menor.

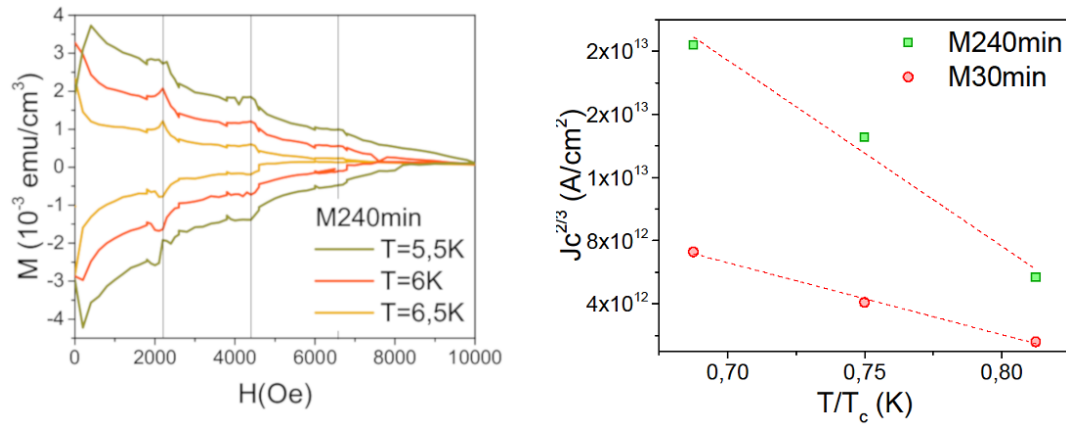


Figura 3.15: panel izquierdo: M vs. H a distintas temperaturas de la muestra M240min. Panel derecho: densidad de corriente crítica, J_c al primer campo de conmensuración ($H=2200$ Oe) de la muestra M30min y M240min. Se puede observar que a temperaturas mayores la densidad de corriente crítica, J_c es menor.

Ahora bien, si queremos analizar cuál es el efecto de la temperatura en la corriente crítica dependiendo del tipo de anclaje, sea aleatorio (defectos intrínsecos) u ordenado (defectos artificiales), tenemos que, para un anclaje aleatorio la corriente crítica decrece exponencialmente con temperatura $J_c = J_c(0)e^{-T/T_0}$ [65]. En el caso de un arreglo pe-

riódico perfecto sabemos que a $H = H_{\phi 1}$ la densidad de corriente crítica es la densidad de corriente a la cual la fuerza de Lorentz es igual a la fuerza de anclaje ($F_L = F_P$) por tanto $J_c(H) \propto F_p(H)$ [65]. Si consideramos la fuerza de anclaje de una inclusión normal con radio mayor que ξ dentro de una película superconductora de espesor t_{film} tenemos que esta puede ser estimada como [66]

$$U_p = \frac{1}{2} H_c^2 \pi \xi^2 \cdot t_{film} = \frac{\phi_0^2 \cdot t_{film}}{16 \pi \kappa^2 \xi^2}, \quad (3.5)$$

donde H_c es el campo crítico y κ es el parámetro de Ginzburg-Landau, entonces la F_p y por tanto la corriente crítica varían con temperatura como

$$J_c(H) \propto F_p(H) = \frac{U_p}{\xi} \propto \frac{1}{\xi^3} \propto (1 - T/T_c)^{3/2} \quad (3.6)$$

En el panel derecho de la figura 3.15 se muestran con línea segmentada una guía del ajuste de la ecuación 3.6. Dado que sólo se midió $M(H)$ a tres temperaturas, no es posible determinar si el ajuste es correcto sin embargo, es claro que la dependencia en $J_c(T)$ del anclaje periódico es menos rápida que un comportamiento exponencial, lo que genera que los picos de conmesuración parezcan más pronunciados a temperaturas cercanas a T_c . Vale la pena aclarar que en esta estimación no se consideró la energía elástica asociada a las deformaciones de la red de vórtices al anclarse en una red de defectos.

3.7. Relajación magnética o “creep” de flujo magnético

La ausencia de centros de anclaje en un superconductor tipo II permite que el arreglo de vórtices pueda siempre alcanzar su equilibrio termodinámico. Si se introducen centros de anclaje en el interior o superficie del superconductor existe la posibilidad de que los vórtices sean atrapados por estos, lo que conduce a un estado de no equilibrio al menos temporalmente. Cualquier proceso que permita relajar la configuración de vórtices del estado de no equilibrio conduce a una redistribución de lazos de corriente y por tanto a un cambio del momento magnético en el tiempo. Se puede pensar que la relajación magnética es causada por el movimiento espontáneo de las líneas de flujo fuera de los centros de anclaje. Tal movimiento usualmente es generado por activación térmica, túnel cuántico u otra activación externa como vibraciones mecánicas.

El concepto de activación térmica generando saltos en los vórtices fuera de sus centros de anclaje fue sugerido por Anderson en 1962 [67] para explicar los datos de relajación de corrientes persistentes en tubos de NbZr de Kim y colaboradores [68]. A continuación presentaremos esta idea de manera simple. Para una explicación más

detallada le sugerimos al lector ver [29] y [69].

La teoría de Anderson-Kim asume que el creep de flujo ocurre cuando un conjunto de líneas de flujo saltan entre centros de anclaje adyacentes. Se asume que este conjunto salta como una unidad ya que el rango λ de interacciones repulsivas entre líneas de flujo es típicamente mayor comparada con la distancia entre líneas; lo cual incentiva un movimiento colectivo.

Dado que la densidad de corriente está relacionada con el gradiente de densidad de vórtices (resultado del anclaje) mediante la ecuación de Maxwell $\nabla \times B = (4\pi/c)J$, una muestra transportando una corriente se encuentra en un estado, desde el punto de vista termodinámico, metaestable y por tanto se ve obligada a decaer debido al movimiento de vórtices.

La ecuación básica que determina el decaimiento de la densidad de corriente esta determinada por la ecuación de Maxwell $\partial_t B = -c\partial_x E$. El arreglo geométrico usado aquí es, el campo paralelo a z y la corriente paralela a y , por lo que el movimiento de los vórtices generan un campo eléctrico también paralelo a y :

$$E = \frac{1}{c}B \times v, \quad (3.7)$$

donde la velocidad de los vórtices es paralela a la fuerza de Lorentz, $v = (v, 0, 0)$.

Usando la ecuación 3.7 y la ley de Faraday obtenemos la ecuación de continuidad de las líneas de flujo

$$\partial_t B = -\partial_x(vB). \quad (3.8)$$

Si relacionamos el campo magnético y la corriente mediante $\nabla \times B = (4\pi/c)J$, obtenemos la ecuación dinámica para la corriente

$$\partial_t j = (c/4\pi)\partial^2 x(vB). \quad (3.9)$$

Las ecuaciones dinámicas 3.8 y 3.9 describen un proceso de difusión no lineal, este aspecto está mejor discutido en [70]. El factor importante en ambas ecuaciones es la velocidad de los vórtices v , la cuál es debida a la activación térmica sobre la barrera de anclaje $U(J)$,

$$v = v_0 e^{-U(J)/T}, \quad (3.10)$$

que conduce a una ecuación dinámica para la densidad de corriente de la forma

$$\partial_t J \simeq -\frac{J_c}{\tau_0} e^{-U(J)/T}. \quad (3.11)$$

La ecuación de arriba puede ser resuelta con precisión logarítmica obteniendo el

resultado de Larkin [71]

$$U(J) = T \ln \left[1 + \frac{t}{t_0} \right] \quad (3.12)$$

con $t_0 = \tau_0 T / J_c [\partial_J U]$.

De la ecuación 3.12 podemos encontrar, simplemente invirtiendo, la evolución en el tiempo de la densidad de corriente apantallada $J(t)$. El parámetro importante que necesitamos conocer es la energía de activación, en particular su dependencia funcional con J , $U(J)$. La escala de energía de la barrera de anclaje es determinada mediante la energía de anclaje colectivo U_c . La dependencia de U sobre la densidad de corriente J es debido a la fuerza de Lorentz, así que la barrera desaparece a $J = J_c$.

$$U(J \rightarrow J_c) \simeq U_c \left[1 - \frac{J}{J_c} \right]^\alpha \quad (3.13)$$

Hasta ahora no hay teoría para el exponente α y su cálculo plantea un problema muy interesante relacionado a la teoría de transiciones de fase [70]. Si consideramos $\alpha = 1$, tal y como propone originalmente Anderson, obtenemos el famoso decaimiento logarítmico en el tiempo de la corriente (diamagnética)

$$J(t) = J_c \left[1 - \frac{T}{U_c} \ln \left(1 + \frac{t}{t_0} \right) \right] \quad (3.14)$$

Así el decaimiento temporal de la corriente es determinada por la razón T/U_c ,

Aquí t_0 es un tiempo microscópico mucho menor que los tiempos de medición, es decir, el término t/t_0 en el logaritmo es mucho mayor que 1, por lo que la expresión $\left(1 + \frac{t}{t_0} \right) \approx \left(\frac{t}{t_0} \right)$

$$J(t) = J_c \left[1 - \frac{T}{U_c} \ln \left(\frac{t}{t_0} \right) \right]. \quad (3.15)$$

A partir de ahora $U_c = U_p$.

Si consideramos que la magnetización es proporcional a J ,

$$M = -\frac{Jd}{4c}, \quad (3.16)$$

siendo d es el espesor de la lámina y c la velocidad de la luz, y combinamos esta ecuación con 3.15 podemos ver algunas características de la relajación magnética: la magnetización se espera que decaiga logarítmicamente en el tiempo y que disminuya con temperatura. Pequeños cambios físicos debidos a procesos de activación exponencial son generalmente referidos como creep, por tanto el mecanismo Anderson-Kim empezó a ser referido como “creep de flujo magnético”.

Ya que la velocidad de relajación depende de la densidad de corriente crítica J_c , la altura de la barrera U_c y el tiempo efectivo t_0 , conviene eliminar algunos de estos

parámetros evaluando la velocidad de relajación normalizada S :

$$S \equiv \frac{1}{M_{irr}} \frac{dM_{irr}}{d \ln t} = \frac{d \ln M_{irr}}{d \ln t} = \frac{-T}{U_p}. \quad (3.17)$$

Reescribiendo la ecuación anterior tenemos que la energía de anclaje expresada en Kelvin es:

$$U_p = -\frac{T}{S}, \quad (3.18)$$

donde S puede ser determinada experimentalmente midiendo relajación magnética del momento magnético de una muestra en estado crítico, ver ecuación 3.17.

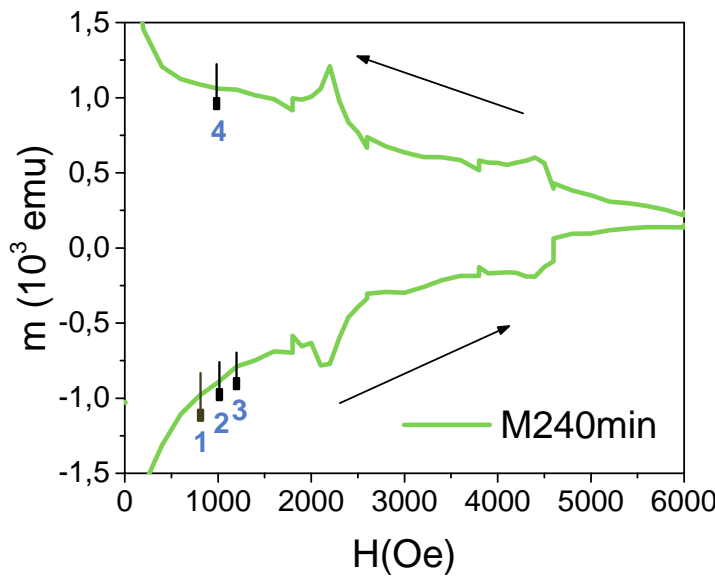


Figura 3.16: Secuencia para medir relajación magnética a $H = 1000$ Oe, en la figura se muestra el $M(H)$ de la muestra M240min. En el paso 1 ajustamos el campo a 800 Oe. En el 2, a $H=1000$ Oe. En el 3, aumentamos hasta $H=1200$ Oe. Finalmente en el paso 4 disminuimos el campo al valor deseado, $H=1000$ Oe, ubicándonos en la rama descendente en campo.

Para medir relajación magnética en las muestras iniciamos el experimento a un campo inferior al que deseamos medir. Posteriormente aumentamos el campo hasta el valor deseado y lo superamos por 200 Oe, esto con el fin de tener la muestra en estado crítico. Luego se disminuye el campo nuevamente hasta el valor deseado, ubicándonos así en la rama de campo descendente. En la figura 3.16 se muestra la secuencia en campo para medir relajación magnética a $H = 1000$ Oe. Primero se fija el campo en $H = 800$ Oe, se realizan 2 aumentos a 1000 Oe y 1200 Oe para finalmente establecer el campo en $H = 1000$ Oe. Esta secuencia nos garantiza que la muestra se encuentre en estado crítico con un gradiente de campo en su interior que disminuye de forma exponencial en el tiempo. Esta medición también se hizo llevando el segundo aumento en campo hasta 6000 Oe, observando el mismo comportamiento en la medida de relajación que

se observó en la secuencia ejecutada por nosotros, es decir se pudo corroborar que un aumento de 200 Oe es suficiente para que la muestra se encuentre en estado crítico.

En el panel izquierdo de la figura 3.17 se puede observar cómo evoluciona la magnetización en el tiempo para la muestra M480min a $T/T_c = 0,8$ y $H = 1000$ Oe. En el panel derecho de la figura 3.17 se muestra el mismo gráfico en log-log para obtener S como se muestra en la ecuación 3.17.

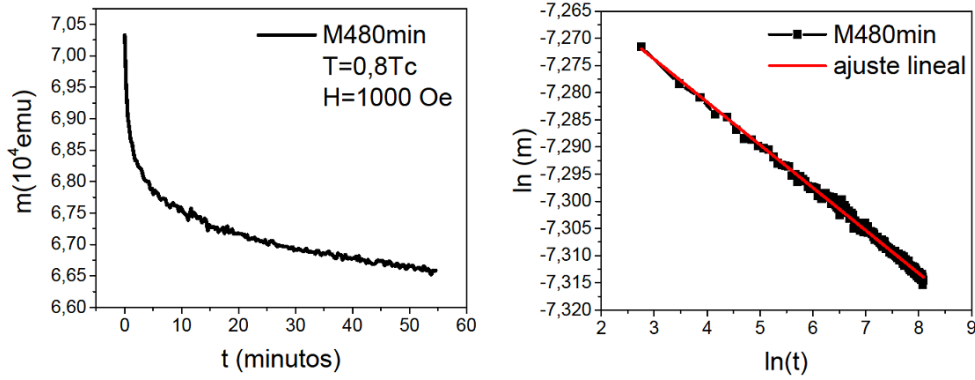


Figura 3.17: Izquierda: Magnetización en función del tiempo a $T=0,8T_c$ y $H=1000$ Oe de la muestra M480min. Derecha: gráfico anterior en escala log-log y su respectivo ajuste

Este procedimiento se realizó para todas las muestras a $T/T_c=0,8$ (temperatura a la cual el anclaje periódico es más fuerte), variando el campo desde 1000 Oe hasta 5000 Oe. En la figura 3.18 se grafica la rama de campo descendente del $M(H)$ de cada muestra (línea negra) y las U_p obtenidas a distintos campos (puntos rojos).

El valor de U_p se obtuvo a partir de la ecuación 3.18 y de los gráficos de creep, donde se extrajo el valor de S para un campo dado. En la tabla 3.7 se muestran dichos valores para el primer campo de conmensuración.

A partir de la figura 3.18 se puede observar una correlación entre los mínimos de la rama ascendente en campo de los $M(H)$ y los máximos en la energía de anclaje a los campos de conmensuración $H = H_{\phi 1}$ y $H = H_{\phi 2}$. Como ya se discutió anteriormente en la sección 3.3.2 este mínimo en la rama ascendente en campo del $M(H)$ (y su correspondiente máximo en la rama descendente en campo) está asociado a un aumento en la densidad de corriente crítica, propiedad estática. A su vez este aumento en J_c indica un anclaje más efectivo. Este resultado en $M(H)$ se corresponde muy bien con las medidas de relajación magnética, donde se observa un aumento en la energía de anclaje U_p a campos de conmensuración. Dado que las muestras más ordenadas presentan picos de conmensuración más pronunciados a $H = H_\phi$, esta correlación es más evidente en las muestras con mayor tiempo de anodización sin embargo, todas las muestras excepto M15min la presentan. Las líneas verticales azules sirven de guía para identificar los campos de conmensuración.

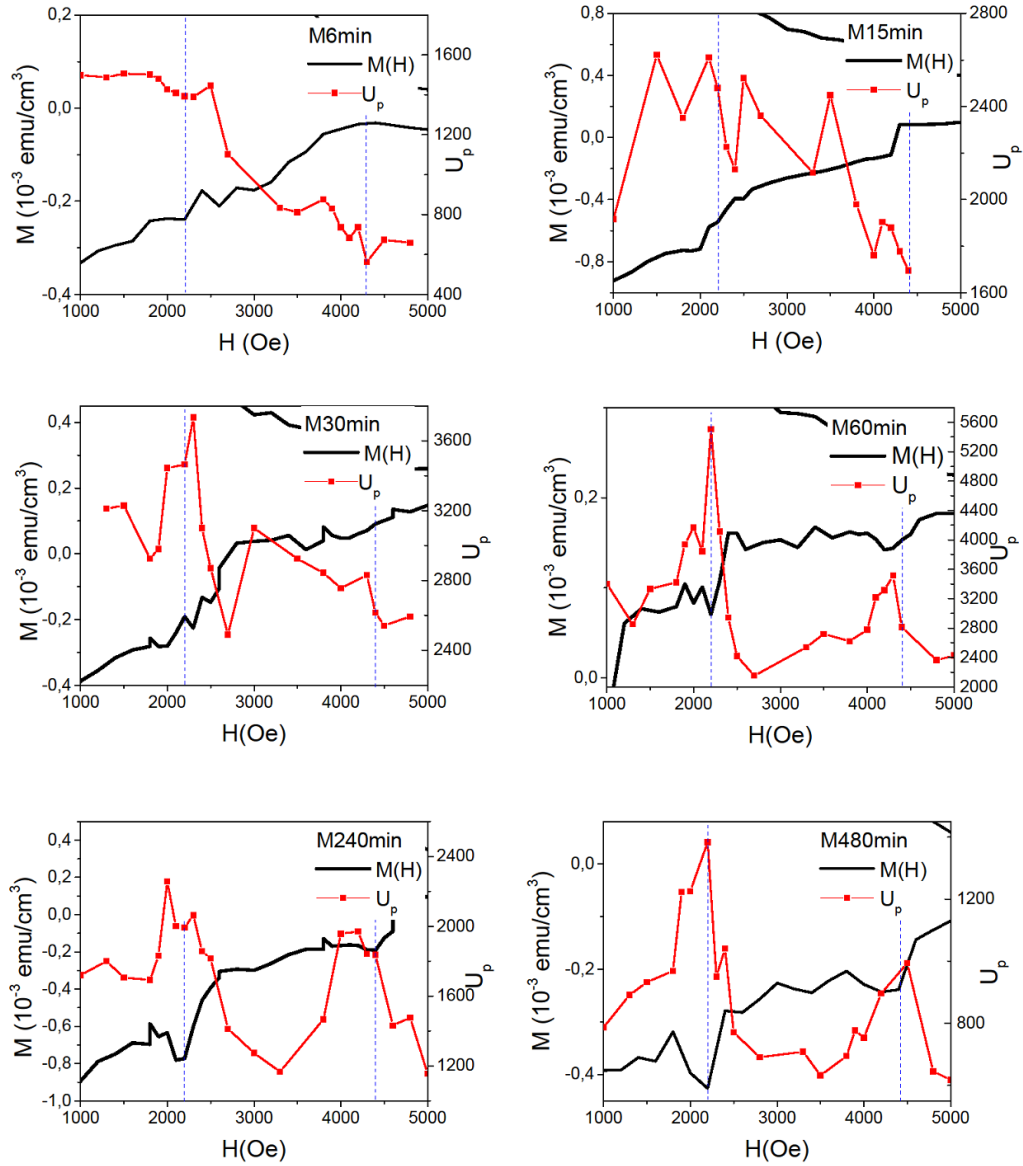


Figura 3.18: Medidas de magnetización y energía de anclaje U_p en función del campo de todas las muestras. La rama de campo descendente del $M(H)$ de cada muestra se presenta como línea negra (eje izquierdo de cada gráfico) y la U_p obtenida a distintos campos como puntos rojos (eje derecho del gráfico). La línea azul indica el primer y segundo campo de conmensuración, en el cual se observa una correlación entre los picos de conmensuración y la energía de anclaje.

Muestra	r/a al cual $g(r) \rightarrow 1$	S (10^{-3})	$U_p(K)$
M6min	1.5	$-4,38 \pm 0,04$	$\sim 1400 \pm 10$
M15min	5.8	$-2,38 \pm 0,05$	$\sim 2500 \pm 50$
M30min	4.8	$-1,79 \pm 0,07$	$\sim 3500 \pm 130$
M60min	7.2	$-1,18 \pm 0,07$	$\sim 5500 \pm 250$
M240min	> 8	$-3,26 \pm 0,02$	$\sim 1900 \pm 10$
M480min	> 8	$-4,48 \pm 0,02$	$\sim 1400 \pm 10$

Tabla 3.7: Energía de anclaje (U_p) para el primer campo de commensuración obtenida a partir de la velocidad de relajación magnética S y la ecuación 3.18. La segunda columna corresponde a la distancia de orden longitudinal.

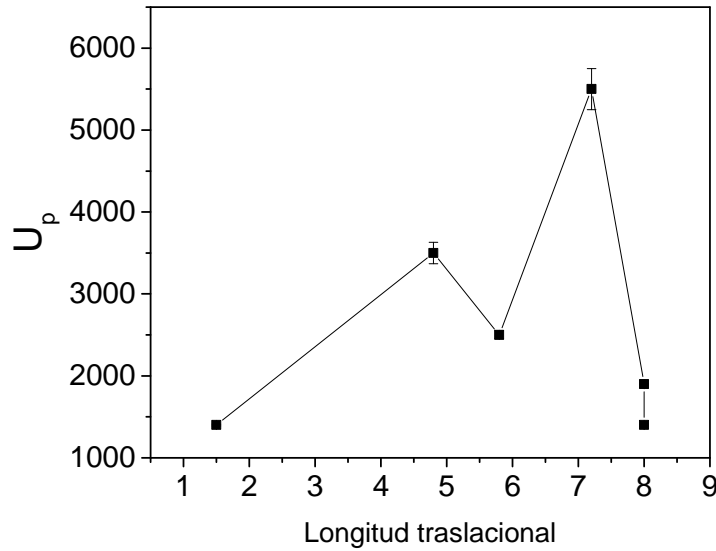


Figura 3.19: Energía de anclaje (U_p) en función de la distancia de orden longitudinal. Se observa que hay una correlación no monótona entre la energía de anclaje U_p y el grado de orden de la red de defectos.

Con el fin de observar como se ve afectada la energía de anclaje con el desorden de la red de defectos, se graficó la energía de anclaje en función de la distancia de orden longitudinal, figura 3.19. A partir de este podemos observar que la energía de anclaje tiene una correlación no monótona con el grado de orden de la red de centros de anclaje, encontrando un máximo para un grado de desorden intermedio. En la sección de conclusiones se discutirá este tema.

3.7.1. Otra forma de calcular la energía de Barrera

Si nos remitimos al trabajo de Yesurum y colaboradores [69] encontramos que la energía de anclaje por unidad de volumen de un defecto en el cual la superconductividad está localmente destruida puede ser definida en función del campo termodinámico del

superconductor H_c y las longitud de penetración λ y coherencia ξ del superconductor:

$$\frac{U_p}{dV} = \frac{H_c^2}{8\pi}, \quad (3.19)$$

donde el campo termodinámico del superconductor es igual a

$$H_c = \frac{\phi_0}{2\sqrt{2}\pi\lambda\xi}. \quad (3.20)$$

Reemplazando dV y H_c , tenemos que U_p es:

$$U_p = \left(\frac{\phi_0}{2\sqrt{2}\pi\lambda\xi} \right)^2 \left(\frac{\pi(\sqrt{2}\xi)^2 \cdot L}{8\pi} \right) \quad (3.21)$$

reagrupando, tenemos

$$U_p = \left(\frac{\phi_0}{4\pi\lambda} \right)^2 \cdot \frac{L}{2} = \varepsilon_0 \cdot \frac{L}{2} \quad (3.22)$$

donde L es la diferencia de altura de la película de Nb (ver figura 3.20) y el término elevado al cuadrado está definido como la escala de energía de vórtices, ε_0 , y puede ser expresado de la siguiente manera

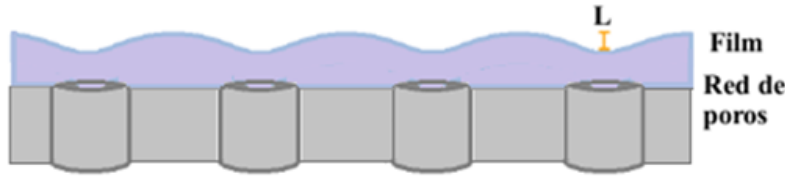


Figura 3.20: Esquema de la diferencia de altura (L) de la película de Nb crecida sobre la membrana porosa

$$\varepsilon_0 [\text{K}/\text{\AA}] = \frac{1,964 \times 10^8}{(\lambda[\text{\AA}])^2} \quad (3.23)$$

Como se puede apreciar en la ecuación 3.22 y 3.23 es necesario conocer el valor de λ para calcular ε_0 y U_p .

Recordemos que λ está definida en términos del camino libre medio ℓ y la longitud de coherencia. Los distintos límites en los cuales puede ser calculado λ son, con respecto a la electrodinámica

$\lambda \ll \xi$ límite no local

$\lambda \gg \xi$ límite local

y con respecto al camino libre medio

$\ell \ll \xi_0$ límite sucio

$\ell \gg \xi_0$ límite limpio

Como esta discutido en [72] las películas delgadas de Nb crecidas en este trabajo se encuentra en el límite sucio-local y por tanto, según la teoría microscópica de Gorkov [73] el valor de λ en este límite es

$$\lambda(0) = \lambda_L(0) \sqrt{\frac{\xi_0}{\ell}}, \quad (3.24)$$

siendo λ_L la longitud de penetración de London y ξ_0 la longitud de coherencia a $T=0$. Ahora bien, de acuerdo a las ecuaciones macroscópicas de Ginzburg-Landau ξ en el límite sucio es

$$\xi(T) = 0,855 \sqrt{\xi_0 \ell} \frac{1}{\sqrt{1-t}}. \quad (3.25)$$

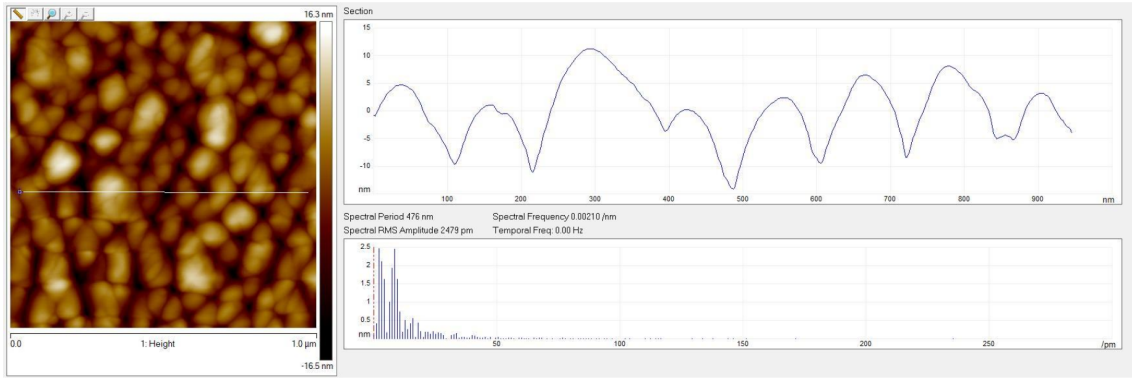


Figura 3.21: Imagen y barrido de la superficie de la película de Nb depositada sobre la membrana porosa con tiempo de primera anodización igual a 240 minutos obtenido mediante el uso del equipo AFM. En este se observa que la película presenta una diferencia de altura $L \sim 15nm$

A partir de las ecuaciones 3.20 y 3.21 podemos afirmar que el producto $\lambda(T = 0) \cdot \xi(T = 0)$ es constante para un mismo material. Por tanto si conocemos la longitud de penetración de nuestras películas de Nb y la longitud de penetración y coherencia del Nb bulto, podemos estimar λ de nuestras películas. La longitud de coherencia de nuestras películas fue estimada a partir del campo de nucleación H_{c2} de y la ecuación 1.2, $\xi(0)_{film} \sim 12nm$. Las longitudes características del Nb Bulk $\lambda(0)_{bulk} \sim 32nm$ y $\xi_{bulk}(0) \sim 39nm$ se obtuvieron de la referencia [70]. El valor de longitud de penetración calculado a partir de lo anterior es $\lambda(0)_{film} \sim 120nm$, si reemplazamos este valor en la ecuación 3.23 tenemos que:

$$\varepsilon_0(T = 0) = \frac{1,964 \times 10^8}{(1200)^2} \sim 120K/nm \quad (3.26)$$

$$\varepsilon_0(t = 0,8) = \varepsilon_0(T = 0) \cdot (1 - t^2) \sim 240K/nm. \quad (3.27)$$

A partir del valor de $\varepsilon(0)$ obtenido en 3.27 y considerando el valor de U_p obtenido de las mediciones de relajación magnética (ver tabla 3.7), junto con la ecuación 3.22, es posible calcular la diferencia de altura L que deberían presentar las películas de Nb crecidas sobre las membranas porosas. En la tabla 3.8 se muestran los valores de L esperados, L^* , para todas las muestras.

Muestra	$U_p(K)$	L^* (nm)
M6min	$\sim 1400 \pm 10$	11
M15min	$\sim 2500 \pm 50$	20
M30min	$\sim 3500 \pm 130$	29
M60min	$\sim 5500 \pm 250$	45
M240min	$\sim 1900 \pm 10$	15
M480min	$\sim 1400 \pm 10$	11

Tabla 3.8: Valor de L esperado, L^* , para el cual U_p es exactamente igual al valor calculado

Con el fin de confirmar si el L^* coincide con el L real de la muestra, se hizo uso del microscopio de fuerza magnética, AFM. Este microscopio nos permitió caracterizar la superficie de la película de Nb crecida sobre membranas porosas, realizando varios barridos. En la imagen 3.21 se observa el perfil de la muestra M240min obtenido. En este se puede apreciar que $L \sim 15nm$ por lo que el valor esperado de L para la muestra M240min condice con el L medido por AFM. Inconvenientes asociados con el equipo AFM evito completar las mediciones de L para las otras muestras.

3.8. Conclusiones

En este capítulo estudiamos el efecto del desorden en la red de centros de anclaje sobre las propiedades de la red de vórtices superconductores. Para ello se fabricaron seis redes de centros de anclaje mediante el método de doble anodizado de aluminio, siendo el tiempo de primera anodización, el parámetro variable y el que determina el orden de los poros en la red.

Para caracterizar el grado de orden de la red de defectos se tomaron micrografías de la superficie de estas mediante SEM. Dichas micrografías fueron analizadas, lo que nos permitió determinar que la muestra fabricada con menor tiempo de anodización carece de orden. En cuanto a las muestras fabricadas con tiempo de anodización superior a seis minutos se pudo observar que todas las muestras presentan una estructura policristalina con orden orientacional de corto alcance, donde un mayor tiempo de primera anodización significa una estructura con poros y granos más grandes junto con una menor dispersión en el número de primeros vecinos y diámetro de poros. Considerando lo anterior podemos concluir que aumentar el tiempo de primera anodización duran-

te la fabricación conlleva a una red de poros policristalina, cuyos granos presentan características similares a una red hexagonal perfecta.

Respecto a las propiedades superconductoras de las películas de Nb crecidas sobre la red de poros, observamos que la temperatura de transición de dichas películas es de 7.5 - 8 K. Estos valores son menores que los del Nb bulk, aunque son razonables y típicos, siendo fácilmente explicables si consideramos la sensibilidad de la T_c del Nb a impurezas.

Si bien el orden del arreglo de centros de anclaje es de corto alcance se observan efectos de conmensuración con la red de vórtices para todas las muestras a distintas temperaturas reducidas, $T/T_c=0.8$, 0.75 y 0.68. La presencia de campos de conmensuración entre la red de vórtices y la red de centros de anclaje se evidencia como campos a los cuales la diferencia entre ambas ramas de la curva de histéresis en magnetización se incrementa, generando máximos en la curva de campo descendente y mínimos en la curva de campo ascendente. Esto es consecuencia de un incremento en la corriente crítica al estar la red de vórtices anclada en forma energéticamente más favorable .

Por último, respecto a las mediciones de relajación magnética pudimos notar que nuestros datos pueden ser descritos con la teoría de “creep” de Anderson-Kim. A partir de esta se obtuvo la energía de anclaje, la cual también pudo ser calculada mediante los parámetros microscópicos, obteniendo valores similares en ambos casos. Un aspecto que nos llamó la atención fue el hecho que la energía de anclaje parece presentar un máximo para un grado de desorden intermedio. Es decir, hay una correlación no monótona entre la energía de anclaje y el grado de orden de la red de centros de anclaje. Este comportamiento podría ser explicado cualitativamente en el siguiente escenario.

Para el caso de las redes más desordenadas, debido a que estas presentan solo orden de muy corto alcance, el anclaje inducido sería equivalente a un anclaje aleatorio, similar al intrínseco por defectos de la misma película de Nb. Por lo tanto no contribuiría significativamente en el campo de conmensuración. En el otro extremo, para las redes más ordenadas, si bien el orden de los poros es casi perfectamente hexagonal dentro de cada grano, los granos entre sí están orientados en forma aleatoria. Esto significa que la red de vórtices, para acomodarse a esta configuración, debería, a su vez, tener una estructura policristalina. Esta configuración implicaría un alto costo de energía elástica para la red de vórtices, por lo que probablemente no suceda, haciendo que la conmensuración se produzca sólo en unos pocos granos, reduciendo la energía de anclaje efectiva promedio. En un rango intermedio de desorden, por otro lado, la red de vórtices podría acomodar mejor la conmensuración, pagando algún costo de energía elástica para acomodarse a mayor cantidad de granos de la red de centros de anclaje, aumentando así la energía de anclaje promedio por vórtice. La posibilidad de este escenario debería ser verificada cuantitativamente por medio de cálculos o simulaciones.

Capítulo 4

Superredes de Nb/B para su posible uso como detector de neutrones

“ There may be more beautiful times, but this one is ours ”

— Jean-Paul Sartre

4.1. Introducción

Dentro del campo de diseño de sensores, uno de los temas más álgidos es la detección de radiación y/o partículas. Esto incluye objetivos astronómicos donde se desea detectar la radiación en la superficie de la Tierra generada por el impacto de partículas muy energéticas [74, 75] (proyecto Auger), la detección de polarización del fondo de microondas [76, 77] (proyecto QUBIC), y objetivos tales como la detección de neutrones, ligada a interés científico y también a problemas de seguridad. Recientemente esta última ha entrado en una etapa de crisis debido a la restricción internacional en la venta de ^3He , en base al cual se construyeron históricamente los detectores de neutrones, restricción originada justamente en el deseo de los países productores de reservar este insumo para uso propio. Esto ha impulsado a la comunidad científica a diseñar y fabricar detectores de neutrones en base a otros materiales. En este contexto el MgB_2 ha atraído atención, debido a su relativamente alta temperatura de transición y al hecho de que el ^{10}B presenta una gran sección eficaz para la captura de neutrones térmicos, 3840 barn, junto con un 20 % de abundancia natural [78]. El producto de la reacción entre el ^{10}B y el neutrón libera un núcleo de ^7Li y una partícula α , además de una energía de 2,31 MeV, lo que puede producir un calentamiento local si esta energía es absorbida por el material.

Sin embargo, para depositar películas delgadas de MgB_2 es necesario trabajar a altas temperaturas [79], haciendo incompatible su integración con dispositivos semiconductores. Como una alternativa, dado que no es necesario que los átomos de B sean parte de la estructura cristalina del superconductor, el material puede ser un compuesto inhomogéneo de B y una película superconductora delgada. Una posible opción de material superconductor es el Nb con una T_c de 9,26 K en volumen. Esto nos motivó a estudiar un sistema de superred Nb/B para su posible uso como sensores de radiación por borde de transición (TES, por “Transition edge sensor”). Los TES se basan en la detección de energía depositada por las partículas a través de la variación de una propiedad física del material que lo compone, usualmente en la cercanía de una transición de fase. Para el caso de un TES que utilice la transición superconductora, el diseño estándar consiste en la fabricación de un hilo delgado, del orden de micron de ancho, que se mantiene a una temperatura ligeramente inferior a la T_c , y por el cual circula una corriente fija. Frente al impacto de una partícula, en nuestro caso un neutrón que sea capturado por un átomo de B, la energía cinética del neutrón y de la reacción nuclear con el B, se depositan en el hilo, calentándolo localmente por encima de T_c . Esto produce un pulso de voltaje medible ya que la resistencia del punto caliente momentáneamente deja de ser nula. Posteriormente, el calor disipa a través del sustrato y el hilo retorna a su estado superconductor, con voltaje nulo. Si el daño local producido por la captura del neutrón no afecta significativamente T_c , el sensor sigue siendo usado normalmente. Eventualmente se puede alcanzar una dosis total acumulada que degrade las propiedades superconductoras, dosis que determinará la vida útil del sensor.

4.2. Superredes

Las superredes o multicapas son estructuras periódicas crecidas alternando el depósito de dos o más elementos. En estas se modula la composición en la dirección de crecimiento. El término “superred” describe generalmente estructuras en las que la distancia característica de la coherencia cristalina perpendicular a las capas es mucho más larga que la distancia de modulación. Un período adicional produce un cambio en las propiedades superconductoras, magnéticas, mecánicas y de transporte [43]. Al variar el material y el espesor de las capas se pueden optimizar las propiedades del sistema a voluntad.

4.3. Fabricación de superredes

Se fabricaron superredes de Nb/B, mediante sputtering (ver sección 2.1.2) a temperatura ambiente. Se utilizaron blancos de Niobio y Boro con una pureza $> 99,9\%$ y

se emplearon sustratos de Si(100). La presión de vacío de la cámara antes del crecimiento fue de 10^{-7} Torr y como gas de sputtering utilizamos Ar a una presión total de 10mTorr. El Nb fue crecido mediante sputtering DC, mientras que el Boro fue crecido por sputtering RF.

La tasa de crecimiento fue calibrada midiendo el espesor de las películas de Nb y B para distintos tiempos de depósito, con un perfilómetro de contacto en un borde de muestra bien definido. Este borde fue generado cubriendo con resina el sustrato para posteriormente dibujar un patrón mediante litografía óptica. Luego se reveló el patrón dibujado como se describe en el capítulo de técnicas experimentales y se procedió a depositar, obteniendo un escalón. Para las películas de Nb el espesor total también fue medido mediante reflectometría de bajo ángulo de RX (XRR), mencionada en la sección 2.2.1 y explicada en más detalle en la siguiente sección. Ambos métodos mostraron resultados consistentes dentro del 8%. Las tasas de crecimiento medidas para la condiciones adoptadas fueron $\sim 1,6$ nm/s para el Nb y $\sim 1,6$ nm/min para el B.

La tabla 4.1 resume las superredes usadas en este estudio con diferente espesor de capa de Nb y B. El número de períodos fue ajustado para que el espesor total de cada superred fuera lo más cercano posible a 100nm, de tal forma que el único parámetro variable fuera el espesor de superred. Vale la pena mencionar que la superred $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$ presenta un espesor total de casi el doble (180 nm), ya que menos de tres períodos de superred no serían representativos. El crecimiento de las superredes siempre empezó con una capa de Nb y consecuentemente terminó con una capa de B. Con el conjunto de muestras crecido se pudo estudiar la sistemática para igual espesor de capa de Nb y capa de B (diagonal en la tabla) para espesor constante de B (columnas en la tabla) y para espesores constantes de Nb (filas en la tabla). La notación utilizada para identificar cada superred tiene la siguiente forma $(Nb_{d_{Nb}}/B_{d_B})_{\times N}$ con d_{Nb} y d_B los espesores nominales de las capa de Niobio y Boro en nm, y N el número de períodos. Las superredes $(Nb_{10}/B_{20})_{\times 3}$ y $(Nb_{10}/B_{30})_{\times 3}$ se crecieron varias veces resultando siempre un material altamente tensionado que fácil y espontáneamente se despegaba del sustrato.

4.4. Estructura cristalina de películas delgadas de Nb y superredes Nb/B

La técnica más usada para caracterizar superredes es la difracción de rayos X. Es nuestro objetivo verificar a partir del difracción de rayos X que las capas depositadas presenten interfaces bien definidas y que los espesores nominales de las capas coincidan con los depositados.

$d_{Nb} \setminus d_B$	5nm	10nm	15nm	20nm	30nm
5nm	$(Nb_5/B_5)_{\times 10}$	$(Nb_5/B_{10})_{\times 6}$	-	-	-
10nm	$(Nb_{10}/B_5)_{\times 6}$	$(Nb_{10}/B_{10})_{\times 5}$	$(Nb_{10}/B_{15})_{\times 4}$	-	-
15nm	-	$(Nb_{15}/B_{10})_{\times 4}$	$(Nb_{15}/B_{15})_{\times 4}$	-	-
20nm	-	$(Nb_{20}/B_{10})_{\times 3}$	-	$(Nb_{20}/B_{20})_{\times 3}$	-
30nm	-	$(Nb_{30}/B_{10})_{\times 3}$	-	-	$(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$

Tabla 4.1: Etiqueta de identificación de cada superred. La notación utilizada tiene la siguiente forma $(Nb_{d_{Nb}}/B_{d_B})_{\times N}$ con d_{Nb} y d_B los espesores nominales de las capa nominales en nm, y N el número de períodos.

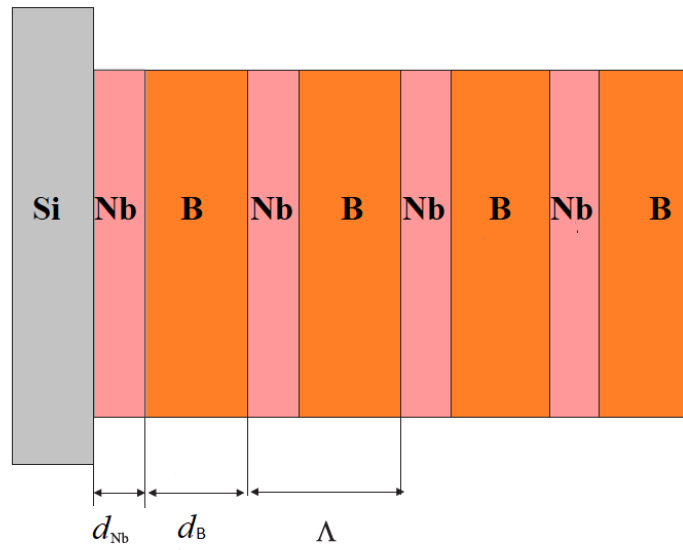


Figura 4.1: Esquema de una superred perfecta. La figura muestra la disposición de las capas superconductoras de Nb, y las capas de B crecidas sobre un sustrato de Si. d_{Nb} es el espesor de la capa de Nb, d_B es el espesor de la capa de B y $\Lambda = d_{Nb} + d_B$ es el periodo de la superred.

Superred perfecta

En la figura 4.1 se muestra una superred perfecta en cuya interface las estructuras cristalinas de ambos materiales ensamblan perfectamente.

Esta superred está formada por capas alternadas de material A (Nb) y B (B). El período de las superred es Λ y se repite N veces (en la figura 4.1, $N=4$). Supongamos que cada capa de material posee un número de planos atómicos, N_A y N_B separados por su correspondiente parámetro de red, a_A y a_B . El espaciado interfacial entre las capas A y B esta dado por e . El tamaño de la celda unidad en la dirección de crecimiento es Λ y las posiciones esperadas de los picos de difracción, según la ley de Bragg, vienen dadas por la ecuación

$$2\Lambda \sin \theta = m\lambda \quad (4.1)$$

donde m es un número entero que indica el orden del pico, θ es el ángulo entre la superficie de la película delgada y el haz de rayos X, $\lambda = 1,5418\text{\AA}$ es la longitud de onda del haz para la radiación K_α del Cu y Λ viene dada por,

$$\Lambda = (N_A - 1)a_A + (N_B - 1)a_B + 2e \quad (4.2)$$

Ya que la intensidad relativa de los picos de difracción es proporcional al cuadrado del factor de scattering de una celda unidad, la intensidad relativa de los picos de Bragg viene dada por:

$$I(q) = \left| \sum_{r=0}^{N_A-1} f_A e^{i(qra_A)} + e^{i[q(N_A-1)a_A+d]} \sum_{s=0}^{N_B-1} f_B e^{i(qsa_B)} \right|^2. \quad (4.3)$$

Donde $q = 4\pi \sin \theta / \lambda_x$ es la magnitud del vector de scattering y f_A y f_B son los factores de estructura del material A y B, respectivamente. Estos últimos representan el poder de dispersión de los planos de cada material.

En la ecuación 4.3 se asume que en las interfaces hay un cambio de composición abrupto, donde los parámetros de red de cada capa no se ven afectados y son idénticos a los del material masivo. A partir de las ecuaciones 4.1, 4.2 y 4.3, se puede calcular el difractograma de rayos X de una multicapa ideal.

Los difractogramas de rayos X de las multicapas o superredes presentan dos zonas de interés, la región de bajo ángulo ($< 15^\circ$) y la de alto ángulo ($> 15^\circ$). A continuación vamos a analizar los difractogramas obtenidos en ambas regiones de las superredes de Nb/B crecidas por nosotros.

4.4.1. Difracción de rayos X de alto ángulo

En la región de alto ángulo las intensidades relativas de los picos de difracción son muy sensibles a la estructura cristalina de cada capa, es decir se espera que la información esté localizada alrededor de los picos que se esperan para cada uno de los constituyentes de la superred si estuvieran separados, en este caso Nb y B.

Los picos de alto ángulo generalmente son indexados alrededor de una constante de red promedio, a , tal que,

$$\frac{2 \sin \theta}{\lambda} = \frac{1}{a} \pm \frac{m}{\Lambda} \quad (4.4)$$

donde $a = \Lambda / (N_A + N_B)$ y m es un entero que indexa los satélites de superred alrededor del pico correspondiente a d .

En la figura 4.2 se muestra el difractograma de rayos X de una película de Nb de 100 nm, de la superred $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$ y del sustrato de silicio en el rango $25^\circ \leq 2\theta \leq 90^\circ$. En este difractograma se pueden identificar tres picos en $2\theta = 38,5^\circ$, $69,2^\circ$ y $82,5^\circ$.

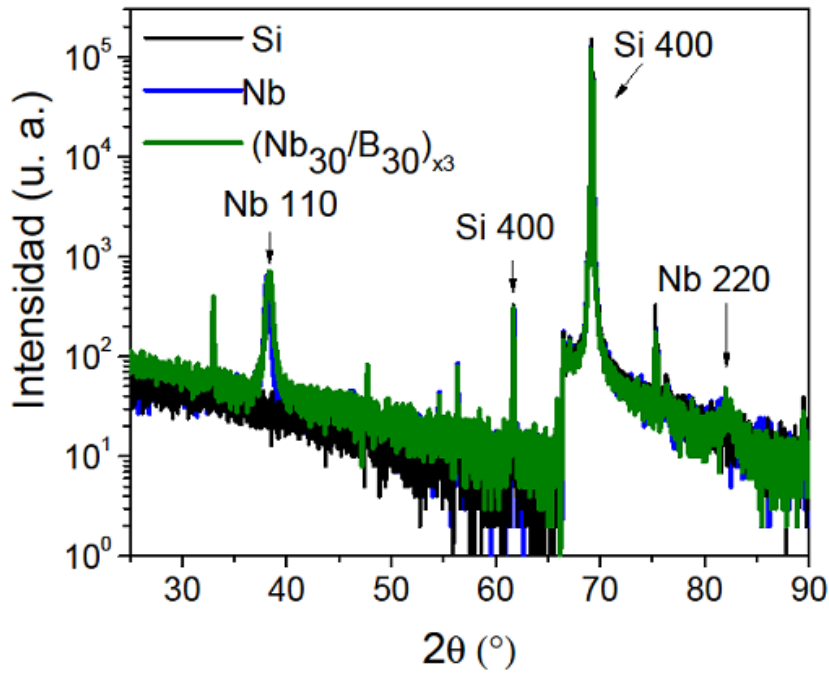


Figura 4.2: Difractograma de rayos X de alto ángulo del sustrato de Silicio (negro), película de Nb (azul) y superred $(Nb_{30}/B_{30}) \times 3$ (verde).

A partir de la posición de estos y del conocimiento de la estructura cristalina del Nb, se puede identificar la dirección de crecimiento de la superred. Si comparamos el valor de 2θ de cada pico con los valores reportados en las tablas cristalográficas se puede determinar que el pico a $2\theta = 69,2^\circ$ corresponde al de Silicio (400), mientras que las reflexiones a $2\theta = 38,5^\circ$ y $2\theta = 82,5^\circ$ corresponden a la familia de planos (110) del Nb con estructura cúbica BCC, lo que indica un crecimiento texturado de las capas de Nb en la dirección (110). Este tipo de medidas se hicieron para todas las muestras encontrando el mismo resultado.

Si bien la teoría de difracción de rayos X para superredes menciona la presencia de picos satélites alrededor del pico central, este efecto no se observó para ninguna de las superredes de Nb/B, ver figura 4.3. Esto podría estar relacionado con un espesor de superred muy grande, por lo que los picos de satélite están muy cerca el uno del otro y no se alcanzan a definir. Lo que sí se puede observar a partir de la figura 4.3 es un corrimiento en el difractograma de las superredes para $2\theta = 38,5^\circ$, es decir en el pico asociado al Nb, dicho corrimiento es hacia 2θ más grandes y no se observa en el pico del Silicio. Al calcular el parámetro de red para todas las muestras se obtuvo en todos los casos un valor cercano al de Nb bulk, $a = 3,3068 \text{ \AA}$ (JCPDF 35-0789) [80] con una diferencia respecto a este del 0,8 % para películas de Nb y 0,4 % para superredes Nb/B. Este cambio en el parámetro de red podría estar asociado a tensiones.

Otro aspecto importante que podemos notar en el difractograma de rayos X de

la superred Nb/B es la ausencia del pico correspondiente al Boro. El motivo de esta ausencia tiene que ver con las características del B y la forma en que interactúan los rayos X con los átomos. Para entender el porqué, es necesario definir primero algunos conceptos. Como vimos en la sección anterior, en difracción de rayos X, la intensidad de radiación difractada por todos los átomos de la celda unidad en una dirección $I(q)$ es proporcional al cuadrado del factor de estructura [81]. La cantidad conocida como el factor de estructura está definido como la transformada de Fourier de la densidad electrónica del cristal:

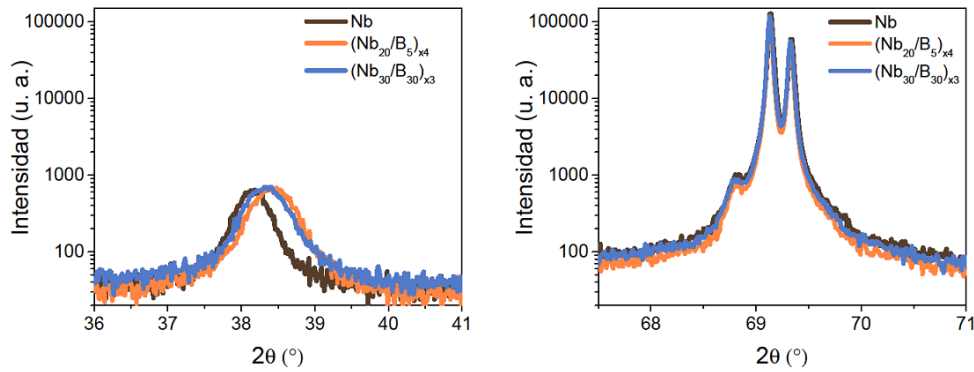


Figura 4.3: Difractograma de rayos X de alto ángulo con un acercamiento en: a) pico del Nb $2\theta = 38,5^\circ$ y b) pico del Si $2\theta = 69,2^\circ$ de una película de Nb y las superredes $(Nb_{20}/B_5)_{\times 4}$ y $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$. La película delgada de Nb corresponde a la línea negra, superred $(Nb_{20}/B_5)_{\times 4}$ línea naranja y superred $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$ línea azul.

$$F(q) = \sum_{j=1}^m f_j(q) e^{iqR_j}, \quad (4.5)$$

donde m es el número de átomos en la celda unidad, R_j indica la posición del átomo j en la celda unidad y $f_j(q)$ es el factor de dispersión atómico.

El factor de dispersión atómico es una cantidad f que expresa la capacidad de un átomo de dispersar, determinado por su estructura interna (número y distribución de electrones). Para un átomo j en una celda unidad, el factor de forma atómico está dado por:

$$f_j(q) = \int \rho_j(r) e^{iqr} dr, \quad (4.6)$$

donde $\rho_j(r)$ es la distribución de carga electrónica del átomo y q es el cambio en el vector de onda de la radiación incidente respecto al vector de onda de la radiación dispersada y depende del ángulo θ de la radiación incidente.

El factor de forma atómico se expresa como la transformada de Fourier de la distribución de carga electrónica del átomo en cuestión. Éste se ve fuertemente afectado

por el ángulo de incidencia θ de la radiación. Para $\theta = 0$ se tiene que $f_j = Z$, donde Z es el número atómico del elemento. A medida que aumenta θ la onda dispersada por los electrones se encuentra más fuera de fase y f decrece.

Teniendo en cuenta los conceptos recién definidos podemos afirmar que ya que los rayos X son dispersados por la nube electrónica del átomo en cuestión, es de esperar que en un difractograma de rayos X elementos con bajo número atómico Z y baja energía en la capa K como el Boro ($Z_B = 5$) no dispersen de manera eficiente los rayos X y por tanto su estructura no se pueda observar por baja intensidad.

4.4.2. Difracción de rayos X de bajo ángulo

Al efectuarse estudios de difracción de rayos X a ángulos muy pequeños ($2\theta < 15^\circ$) la teoría cinemática deja de ser válida haciendo necesario utilizar otro formalismo. Se introduce así la teoría óptica. Esta teoría contempla fenómenos como la refracción y la reflexión total. En el modelo óptico, cada capa es tratada como si fuese un medio continuo, con un índice de refracción n . A bajos ángulos la intensidad de los rayos X difractados es sensible al perfil de composición y no a la estructura del cristal. La posición de los picos entonces se ve afectada por el índice de refracción del material [82],

$$\sin^2 \theta = \left(\frac{m\lambda}{2\Lambda} \right)^2 + 2\delta, \quad (4.7)$$

donde el índice de refracción de rayos X para un dado material se calcula a partir de la siguiente expresión:

$$n = 1 - \delta - i\beta, \quad (4.8)$$

y los parámetros δ y β están dados por [81]:

$$\delta = \frac{r_e \lambda^2 N}{2\pi} \rho(f_0 + \Delta f^{'}) ; \beta = \frac{r_e \lambda^2 N}{2\pi} \rho(\Delta f^{''}) = \frac{\mu \lambda}{4\pi}, \quad (4.9)$$

siendo $r_e = e^2/mc^2 = 2,818 \times 10^{-13}$ cm el radio clásico del electrón, λ la longitud de onda de los rayos X, N el número de Avogadro, ρ simboliza la densidad atómica del material, f_0 el factor de forma atómico, $\Delta f^{'}$ y $\Delta f^{''}$ la parte real e imaginaria de la corrección por dispersión anómala del factor atómico [83] y μ es el coeficiente de absorción lineal del material .

Cuando el índice de refracción del medio incidente es mayor que su par del medio transmitido tenemos un fenómeno llamado de reflexión total. Se tiene un ángulo crítico θ_c tal que para valores menores a dicho ángulo toda la radiación es reflejada, permaneciendo la intensidad constante. Dicho ángulo crítico está dado por la expresión:

$$\cos \theta_c = Re(n) = 1 - \delta. \quad (4.10)$$

Normalmente el ángulo crítico para un metal como el Nb es muy pequeño ($\sim 0,4^\circ$), por lo que:

$$\theta_c \approx \sqrt{2\delta}. \quad (4.11)$$

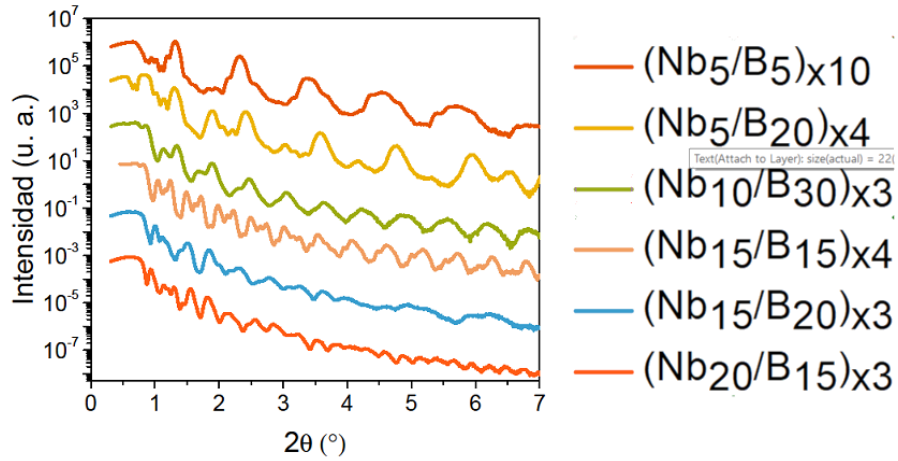


Figura 4.4: Curvas XRR de las superredes $(Nb_5/B_5)_{\times 4}$, $(Nb_{10}/B_{30})_{\times 3}$, $(Nb_{15}/B_{20})_{\times 3}$ y $(Nb_{20}/B_{15})_{\times 3}$. Nótese que las curvas están multiplicadas por un factor para desplazarlas verticalmente

En la figura 4.4 se presentan curvas XRR de las superredes $(Nb_5/B_5)_{\times 10}$, $(Nb_5/B_{20})_{\times 4}$, $(Nb_{10}/B_{30})_{\times 3}$, $(Nb_{15}/B_{15})_{\times 4}$, $(Nb_{15}/B_{20})_{\times 3}$ y $(Nb_{20}/B_{15})_{\times 3}$. En todas se observan oscilaciones debido al tamaño finito de la muestra (franjas de Kiessig) y picos de superred. Las Franjas de Kiessig [84] son originadas por la interferencia coherente y constructiva entre la radiación reflejada en la superficie (muestra/aire) y en la base de la muestra (muestra/substrato). Por tanto la modulación de esta nos da una idea del espesor total de la muestra. Por otro lado, los picos de superred (picos más intensos) son originados por la modulación de la multicapa. A partir de ellos se puede determinar el período de modulación de la superred. Cuando hay rugosidades en las interfaces las oscilaciones pueden extinguirse. Por eso picos bien definidos indican que la parte superior de la película delgada es relativamente plana y que la rugosidad en la interfaz película/substrato es también bastante reducida.

Otro aspecto que se puede observar en la figura 4.4 si comparamos los XRR de todas las muestras es cómo cambian las posiciones angulares y el espaciado de los picos de superred al variar el período en estas. Como es de esperarse las muestras con igual periodicidad y espesor total $(Nb_{15}/B_{20})_{\times 3}$ y $(Nb_{20}/B_{15})_{\times 3}$ presentan posiciones angulares y espaciado de los picos de superred casi idénticos.

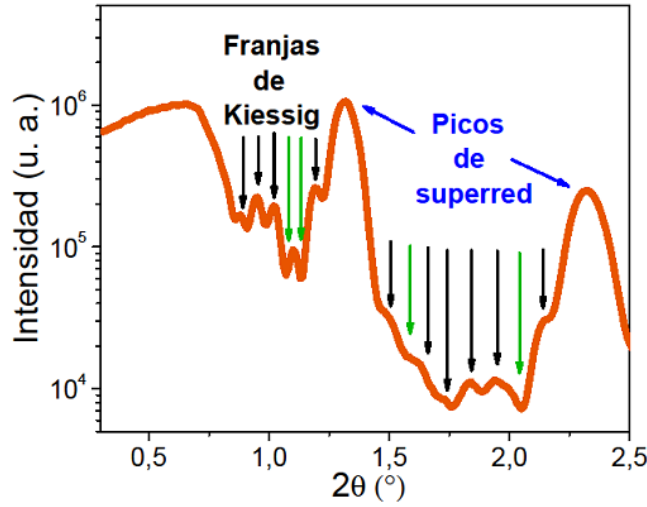


Figura 4.5: Difractograma de rayos X de bajo ángulo correspondiente a la muestra $(Nb_5/B_5)_{\times 10}$.

A continuación se hará un análisis detallado de reflectividad para la superred $(Nb_5/B_5)_{\times 10}$. La figura 4.5 muestra una ampliación de la medida de rayos X a bajos ángulos (la medición de bajo ángulo completa se puede observar en la figura 4.4). En esta se pueden distinguir claramente la existencia de franjas de Kiessig y picos de superred es decir, que las interfaces son muy poco rugosas. En un difractograma de rayos X de bajo ángulo el número de picos o franjas de Kiessig entre dos picos de superred es de $N-2$, donde N es el número de bicapas de la multicapa. Ya que para la muestra $(Nb_5/B_5)_{\times 10}$, $N = 10$, entonces se deberían ver 8 picos de Kiessig entre dos picos de superred. En la figura 4.5 sólo se pueden distinguir 6 picos. Dado que la distancia entre franjas de Kiessig debería ser la misma, agregamos flechas verdes en valles donde creemos deberían observarse los picos asociados a estas y que quizás debido a interferencia destructiva no se observan. Si consideramos las nuevas posiciones agregadas N sería igual a 8, como es de esperarse.

Ya que a través del análisis de las franjas de Kiessig es posible deducir el espesor t de las muestra, se usó la ecuación de Bragg modificada por la ley de Snell (ecuación 4.12) para estimar el espesor de las capas para el perfil de reflectividad de la muestra $(Nb_5/B_5)_{\times 10}$ [81].

$$(m + 1/2)^2 = \left(\frac{2t}{\lambda}\right)^2 [\sin^2 \theta - 2\delta] \quad (4.12)$$

En esta m es el orden del máximo o mínimo, y $1/2$ se debe a que estamos considerando los máximos de los picos (si consideramos los mínimos no es necesario agregar el factor $1/2$). En la figura 4.6 se comprueba la relación lineal entre $(m + 1/2)^2$ y $\sin^2 \theta$ cuya pendiente es proporcional al espesor total de la muestra, ver figura 4.6a. El espesor

obtenido fue de $t = 90,2 \pm 5$ nm.

El período de modulación de la superred fue derivado a partir de la expresión 4.13. Esta expresión es similar a la ecuación 4.12, la diferencia radica en que al considerar los picos de superred, tenemos que el espesor obtenido ahora corresponde al espesor de la bicapa de la superred, Λ .

$$(m + 1/2)^2 = \left(\frac{2\Lambda}{\lambda} \right)^2 [\sin^2 \theta - 2\delta] \quad (4.13)$$

La Figura 4.6b muestra dicha relación lineal entre $(m+1/2)^2$ y $\sin^2 \theta$ cuya pendiente es proporcional al espesor de la superred. El espesor de superred o bicapa calculado fue de $\Lambda = 9,2 \pm 0,6$ nm.

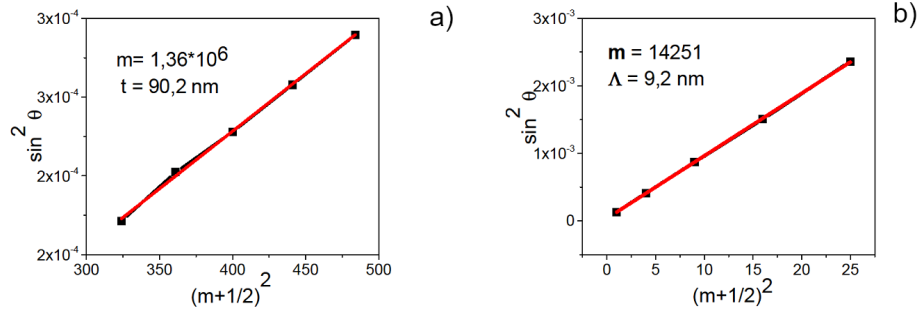


Figura 4.6: Determinación gráfica del espesor total de la muestra (figura a) y del período de la superred (figura b) a partir de las franjas de Kiessig.

En la tabla 4.2 se muestran los espesores de las superredes $(Nb_5/B_5)_{\times 10}$, $(Nb_5/B_{20})_{\times 4}$, $(Nb_{10}/B_{30})_{\times 3}$, $(Nb_{15}/B_{15})_{\times 4}$, $(Nb_{15}/B_{20})_{\times 3}$ y $(Nb_{20}/B_{15})_{\times 3}$. obtenidos a partir del gráfico m^2 vs $\sin^2 \theta$. En esta se puede notar que el espesor de superred crecido coincide con el esperado sólo para las muestras con menor espesor total $(Nb_5/B_5)_{\times 10}$, $(Nb_5/B_{20})_{\times 4}$ y $(Nb_{15}/B_{15})_{\times 4}$, esto podría deberse a problemas en el crecimiento de las superredes cuando el espesor de niobio, boro o ambos supera algún espesor crítico. Más adelante en los resultados de TEM discutiremos más sobre este tema.

Muestra	espesor de superred esperado (nm)	espesor de superred medido (nm)
$(Nb_5/B_5)_{\times 10}$	10	$9,2 \pm 0,6$
$(Nb_5/B_{20})_{\times 4}$	25	$18 \pm 0,8$
$(Nb_{10}/B_{30})_{\times 3}$	40	$14 \pm 1,6$
$(Nb_{15}/B_{15})_{\times 4}$	30	$29 \pm 0,7$
$(Nb_{20}/B_{15})_{\times 3}$	35	$17 \pm 0,7$
$(Nb_{15}/B_{20})_{\times 3}$	35	$16 \pm 0,7$

Tabla 4.2: Espesor de la superred determinado a partir de la pendiente del gráfico m^2 y $\sin^2 \theta$

Para determinar las rugosidades en las interfaces es necesario ajustar toda la curva. Para simular o ajustar curvas XRR aplicando la teoría óptica hay diversos programas de acceso libre y gratuito que utilizan el formalismo de Parrat [85]. Entre dichos programas elegimos el Parrat32 [86]. Los parámetros a introducir en los programas son la densidad de longitud de scattering (SLD) de cada capa además de sus respectivos espesores y rugosidades. Dicha densidad SLD tiene la siguiente relación: $\rho = 2\pi\delta/\lambda^2 \approx \pi\theta_c^2/\lambda^2$ y la parte imaginaria es $\text{Im}\rho = 2\pi\beta/\lambda^2 = \mu/2\lambda$.

La figura 4.7 muestra el ajuste de los datos de reflectividad de la muestra $(Nb_5/B_5)_{\times 10}$ de acuerdo al formalismo recursivo Parratt 32. Este software permite hacer una simulación de la reflectometría entre los planos, dando como resultado la reflectometría normalizada en función del parámetro $Q_z(\text{\AA}^{-1})$ el cual es equivalente a $4\pi\sin(\theta)/\lambda$. En la tabla 4.3 se muestran los valores ingresados en el programa, longitud de scattering real e imaginaria y los parámetros obtenidos, espesor y rugosidad del Nb y B. De esta podemos decir que nuestra estimación de crecimiento para la muestra $(Nb_5/B_5)_{\times 10}$ condice en gran medida con lo que obtenemos de este tipo de análisis. Vale la pena aclarar que el software Parratt 32 se utilizó para simular los datos de reflectometría de todas las muestras, incluyendo algunos casos en los que se consideró un espesor de interfaz que involucraba a los dos materiales, sin embargo, este sólo convergía para las muestras con igual período de Nb y B con espesor de interfaz igual a cero.

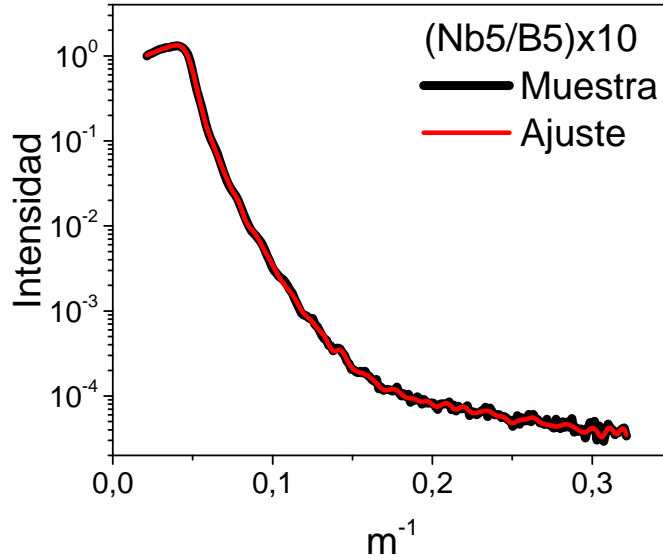


Figura 4.7: Perfil de reflectividad de RX y ajuste de medición mediante el Parrat32

Capa	Espesor (nm)	Rugosidad (nm)	Longitud scattering real $(nm)^{-2}$	Longitud scattering Im $(nm)^{-2}$
Substrato	infinito	0,6713	$1,92 \times 10^{-8}$	$3,54 \times 10^{-8}$
Nb	5,12	0,6	$3,87 \times 10^{-7}$	$7,867 \times 10^{-7}$
B	5,566	1	$4,66 \times 10^{-7}$	$1,341 \times 10^{-7}$

Tabla 4.3: Espesor, rugosidad y longitud de coherencia obtenidos usando el programa Parratt32 de la muestra $(Nb_5/B_5)_{\times 10}$

4.4.3. TEM

Por medio de microscopia TEM se estudió la microestructura en las superredes. La figura 4.8.a y 4.8.b muestra micrografías TEM en campo claro correspondientes a la superred $(Nb_{20}/B_5)_{\times 4}$ y $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$ respectivamente.

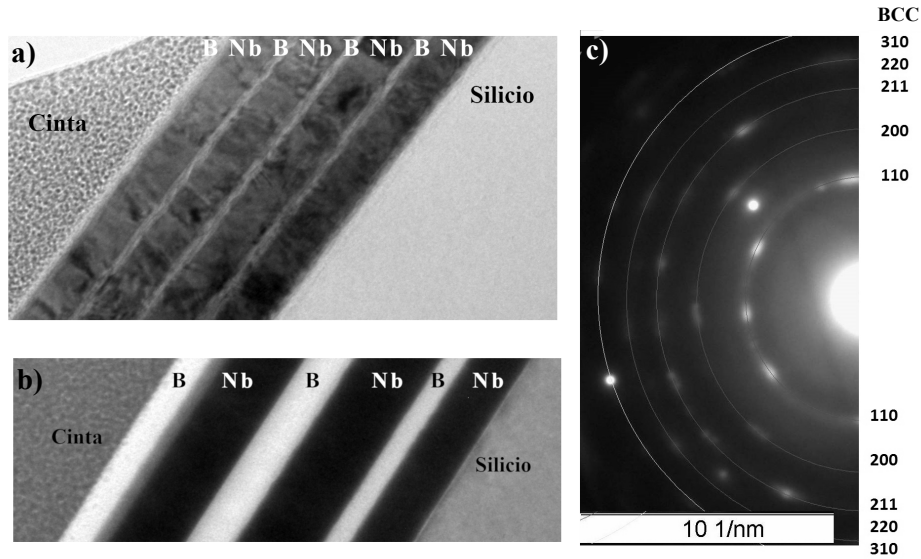


Figura 4.8: micrografías TEM en campo claro, figura a) y b), correspondientes a la superred $(Nb_{20}/B_5)_{\times 4}$ y $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$ respectivamente. la figura c) muestra la difracción de anillos correspondiente a la muestra $(Nb_{20}/B_5)_{\times 4}$, donde las reflexiones indexadas corresponden a la estructura BCC del Nb.

En la figura 4.8.a y b se perciben regiones con distintos contrastes lo que implica distintos materiales. Para la figura 4.8.a se puede observar el Silicio (derecha), una estructura de 4 capas que se repite y la cinta usada para sujetar la muestra (izquierda). La estructura de 4 capas corresponde a la superred donde el Nb son las franjas más oscuras y el Boro las más claras. En la figura 4.8.b se observa el mismo tipo de estructura, en este caso como es de esperarse la superred tiene tres períodos. Un aspecto que resulta llamativo, es el hecho de que en la micrografía 4.8.b el espesor de boro parece diferir entre capas, siendo menor para la primera capa crecida. Esto podría estar asociado a problemas en el crecimiento de las superredes cuando el espesor de Boro supera

algún valor crítico. Recordemos que las superredes $(Nb_{10}/B_{20})_{\times 3}$ y $(Nb_{10}/B_{30})_{\times 3}$ se crecieron varias veces resultando siempre un material altamente tensionado que fácil y espontáneamente se despegaba del sustrato y que además los espesores calculados a partir de las mediciones de reflectividad no coincidían con los esperados para las muestras con período de superred mayor.

La difracción de anillos correspondiente a la muestra $(Nb_{20}/B_5)_{\times 4}$ se muestra en la figura (4.8.c). Las reflexiones indexadas corresponden a la estructura BCC del Nb.

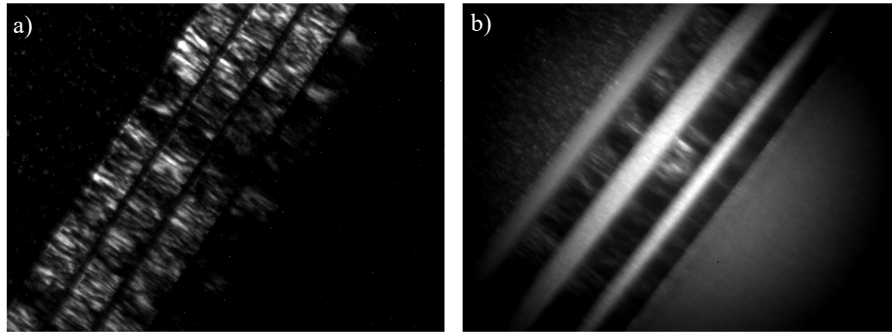


Figura 4.9: Micrografías TEM en campo oscuro de las superredes $(Nb_{20}/B_5)_{\times 4}$ y $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$

La figura 4.9a y b muestra micrografías TEM en campo oscuro de las superredes $(Nb_{20}/B_5)_{\times 4}$ y $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$ respectivamente. A partir de estas podemos afirmar que el crecimiento del Nb es columnar con dirección preferencial perpendicular a la muestra. Vale la pena aclarar que si bien la figura 4.9.b presenta menor calidad, esto se debe al mayor grosor de la muestra.

4.5. Propiedades superconductoras

La temperatura a la cual ocurre la transición superconductora, T_c , de las películas de Nb y superredes de Nb/B fabricadas en esta tesis se muestran en la figura 4.10. En el panel izquierdo de la misma se observa la evolución de T_c con el espesor de Nb obtenida a través de medidas de transporte eléctrico, mientras que la evolución de T_c que se muestra en el panel derecho fue obtenida a partir de medidas de momento magnético. Las mediciones asociadas al panel derecho fueron tomadas por el Dr. Diego Franco y los valores obtenidos fueron reportados en la publicación asociada a este trabajo [87].

Dado que los requerimientos para medir transporte y magnetización son distintos (para las mediciones de transporte se colocaron contactos en la superficie de la muestra utilizando el método de cuatro puntas que se describe en el capítulo de técnicas

experimentales), es necesario aclarar que la muestra a la cual se le mide transporte no es la misma que la de mediciones de momento magnético, aunque por supuesto, los parámetros de crecimiento de ambas son iguales.

Si comparamos las temperaturas de transición obtenidas por ambos métodos u observamos la tabla 4.4, podemos notar que la T_c obtenida en ambos casos son similares para casi todas las muestras excepto las dos muestras con mayor espesor de Nb y B, $(Nb_{20}/B_{20})_{\times 10}$ y $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 10}$. Esto lo podemos considerar como un indicio de la calidad y homogeneidad de las muestras. Ahora bien, si comparamos las superredes crecidas con películas delgadas de Nb del mismo espesor que la capa, podemos notar que para un espesor de Nb dado todas las superredes muestran una T_c más alta que la película delgada, incluso se observaron superredes de Nb/B con propiedades superconductoras para espesores de Nb de hasta 5nm, $d_{Nb} = 5nm$, mientras que las películas de Nb fabricadas en este trabajo con espesores menores que 12-17 nm, mostraban superconductividad sólo por debajo de 5 K. Es decir, al parecer las superredes son mucho menos dependiente del espesor de Nb que las películas delgadas superconductoras. Una posible explicación a este suceso, podría estar relacionado con la capacidad de la capa de B para actuar como una capa protectora que previene la formación de óxido en la superficie del Nb.

Muestra	$T_{c\text{transporte}}$ K	$T_{c\text{momento magnético}}$ K
$(Nb_5/B_{10})_{\times 10}$	$6,9 \pm 0,1$	$6,9 \pm 0,1$
$(Nb_{10}/B_{10})_{\times 10}$	$8,3 \pm 0,2$	$8 \pm 0,1$
$(Nb_{15}/B_{10})_{\times 10}$	$8 \pm 0,1$	$7,9 \pm 0,1$
$(Nb_{20}/B_{10})_{\times 10}$	$8,4 \pm 0,2$	$8,4 \pm 0,2$
$(Nb_{30}/B_{10})_{\times 10}$	$8,8 \pm 0,2$	$8,8 \pm 0,2$
$(Nb_{15}/B_{15})_{\times 10}$	$7,7 \pm 0,1$	$7,7 \pm 0,1$
$(Nb_{20}/B_{20})_{\times 10}$	$8,1 \pm 0,1$	$8,6 \pm 0,2$
$(Nb_{30}/B_{30})_{\times 10}$	$7,2 \pm 0,1$	$8,5 \pm 0,2$

Tabla 4.4: T_c de las superredes obtenida mediante medidas de transporte eléctrico y momento magnético.

Otro aspecto que pudimos notar es que la T_c parece ser casi independiente del espesor de la capa de B. Lo que puede indicar que las capas de Nb están desacopladas desde el punto de vista superconductor, con el parámetro superconductor siendo cero dentro de las capas de B [88]. En lo que respecta a la dependencia de T_c con el espesor de Nb, hay al menos dos efectos básicos que gobiernan las propiedades superconductoras de las películas delgadas y podrían explicar esta depresión de T_c a medida que se reduce el espesor de la película superconductora: efecto de proximidad y efectos de localización. Si bien los datos presentados aquí no nos permiten identificar cuál de estos efectos es el responsable de dicha depresión de T_c , a continuación describiremos brevemente cada

uno de estos

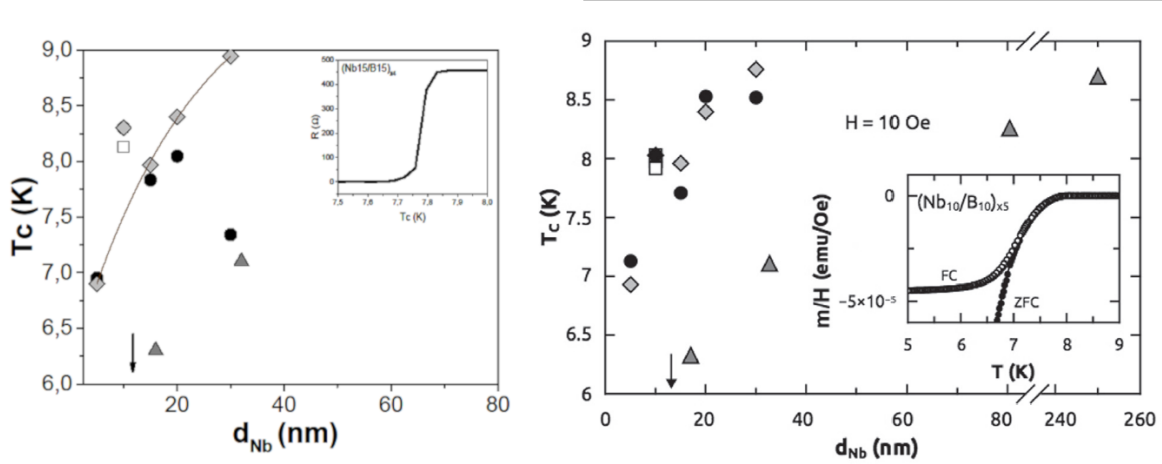


Figura 4.10: Dependencia de la temperatura de transición superconductora (T_c) con el espesor de la capa de Nb, d_{Nb} , para películas de Nb y superredes Nb/B, panel derecho corresponde a los resultados obtenidos mediante medidas de magnetización (mediciones de Diego Fanco [87]) y el panel izquierdo corresponde a los resultados obtenidos por medidas de transporte. La flecha vertical indica el espesor mínimo de una película de Nb con propiedades superconductoras; Triangulos: películas delgadas de Nb; Circulos: Superredes Nb_{dNb}/B_{dB} con $d_{Nb} = d_B$; Diamantes: Superredes Nb_{dNb}/B_{10} ; Cuadrados: Superredes $Nb_{10}B_{dB}$. El inset muestra una curva típica R vs T

Efecto de proximidad

Cuando se fabrican estructuras que combinan materiales con diferentes ordenes de largo alcance y se ponen en contacto metálico, se observa una variación en las propiedades de estos cerca de la interfaz. En el caso de un superconductor en contacto con un metal normal, los pares de Cooper pueden penetrar en el metal una distancia característica e inducir superconductividad en este. Si el movimiento de los electrones es difusivo, esta distancia será proporcional a la longitud de difusión térmica, $L_T \sim \sqrt{D/T}$, donde D es la constante de difusión. En el caso de un metal normal puro, la distancia característica es $\xi_T \sim v_f/T$, donde v_f es la velocidad de Fermi. Este fenómeno se conoce como “Efecto de proximidad” [88].

Simultáneamente, la superconductividad en el material superconductor se debilita en las cercanías de la interfase con el metal normal, resultando en una disminución de la temperatura de transición superconductora cuando una capa superconductora muy fina está en contacto con un metal normal. Si el espesor de la capa superconductora es menor que un determinado espesor crítico, el efecto de proximidad suprime totalmente la transición superconductora. Para un tratamiento más detallado remitiremos al lector a las referencias [88, 89] donde todos estos fenómenos y los primeros resultados experimentales y teóricos fueron revisados y recopilados por Deutscher y de Gennes.

Efectos de localización

En 1982 se observó que el desorden genera la localización de electrones en una forma que depende críticamente de la dimensión. Maekawa y Fukuyama mostraron teóricamente por primera vez perturbando respecto a $(\varepsilon_f \tau)^{-1}$ donde ε_f y τ son la energía de Fermi y el tiempo de vida de un electrón respectivamente, que la T_c en dos dimensiones decrece en proporción a $(\varepsilon_f \tau)^{-1}$ en el régimen débilmente localizado. En particular la teoría predice, y experimentos verifican, que en dos dimensiones (2D) incluso un desorden débil (es decir, un valor de $R < h/e^2$) es suficiente para inducir localización electrónica y producir un incremento logarítmico de la resistencia a bajas temperaturas y al mismo tiempo una depresión de T_c lineal en R . La teoría de localización sugiere que la reducción de T_c es una función sólo de Resistencia.

4.5.1. Campos críticos

Los datos de resistividad (ρ) como función de T para las superredes con un campo $H = 1, 3, 5, 7$ y 9 kOe aplicado perpendicular H_\perp y paralelo H_\parallel a la superficie de la muestra se observan en la figura 4.11. Para determinar la resistividad se normalizó la resistencia por las dimensiones del patrón diseñado mediante litografía (ver sección 2.2.5) y el espesor de la superred. Este tipo de medición permite determinar los campos críticos perpendicular y paralelo $H_{c2\perp}(T)$ y $H_{c2\parallel}(T)$ de la muestra $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$, observando un comportamiento lineal en $H_{c2\perp}(T)$ y un comportamiento tipo raíz cuadrada en $H_{c2\parallel}(T)$, lo cual está en concordancia con lo esperado para películas delgadas con espesor d menor que la longitud de coherencia superconductora $\xi(T)$.

Ajustando los datos obtenidos con la ecuación 1.2 del capítulo 1 de Introducción, y conociendo el valor del cuanto de flujo magnético $\phi_0 = 2,07 \times 10^{-7} G \cdot cm^2$ obtenemos un valor de longitud de coherencia, $\xi(0) \approx 10nm$, siendo el valor típico de las películas delgadas de Nb crecidas en nuestro laboratorio de $\xi(0) \approx 12nm$ [90].

Muestra	d_{Nb}/d_B (nm)	$\xi(0)$ (nm)	d (nm)
$(Nb_{10}/B_{10})_{\times 10}$	10 / 10	$9,12 \pm 0,1$	$8,5 \pm 0,1$
$(Nb_{30}/B_{30})_{\times 10}$	30 / 30	$10,34 \pm 0,2$	$28,6 \pm 0,1$

Tabla 4.5: Longitud de coherencia ξ y espesor de capa superconductora de las muestras $(Nb_{10}/B_{10})_{\times 10}$ y $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 10}$

Una vez obtenido el valor de longitud de coherencia y mediante la ecuación 1.4 se obtuvo el espesor d de la capa superconductora, siendo este valor del orden del espesor de las capas de Nb en lugar del espesor total de las superredes ($\approx 100nm$). Estos resultados nos permiten confirmar el desacople de las capas de Nb, implicando que las

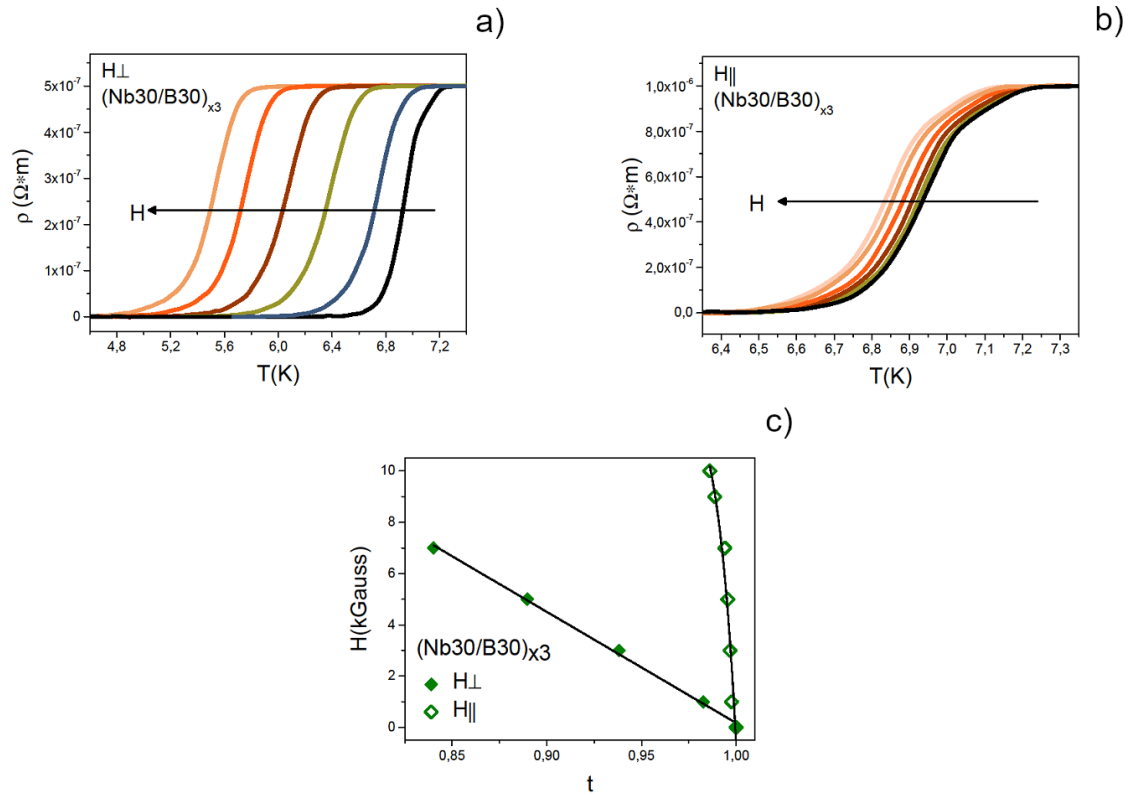


Figura 4.11: ρ vs T de la muestra $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$ con un campo $H = 1, 3, 5, 7$ y 9 kOe aplicado perpendicular a) y paralelo b) a la superficie. c) Dependencia de la temperatura reducida $t = T/T_c$ ($H=0$) con el campo crítico $H_{c2} \perp$ (diamante lleno) y $H_{c2} \parallel$ (diamante vacío) de la muestra $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$. Las líneas muestran el ajuste de los datos con la ecuación 1.2 y 1.4

superredes deben ser consideradas como apilamientos de películas delgadas de Nb de espesor d_{Nb} independiente.

4.5.2. Corrientes críticas

Por otro lado se midieron curvas densidad de corriente (J) - voltaje (V) para las superredes $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$ y $(Nb_{15}/B_{15})_{\times 4}$ con el campo orientado perpendicular a la superficie de la muestra, ver figura 4.12. Las temperaturas a las cuales se midió fueron $3, 4$ y 5 K. El área de la muestra que se consideró para el cálculo de J fue el espesor de la capa superconductora, ya que como se demostró en la sección anterior las capas están desacopladas entre sí y por tanto no circula corriente superconductora por las capas de Boro.

En mediciones de este tipo, el desanclaje de las líneas de flujo ocurre cuando la corriente eléctrica es lo suficientemente grande como para arrancarlas de los centros de anclaje, generando voltaje. Después del desanclaje se puede observar que el voltaje incrementa exponencialmente al incrementar la corriente. A medida que se aumenta el campo magnético la corriente requerida para que ocurra el desanclaje decrece y

si seguimos aumentando el campo magnético las curvas I-V dejan de presentar un comportamiento exponencial. El rango de valores de J_c obtenido a partir de estas mediciones tomando como valor de definición $V = 2\mu\text{Volt}$ es de $1 - 5 \times 10^7 \text{ A/cm}^2$.

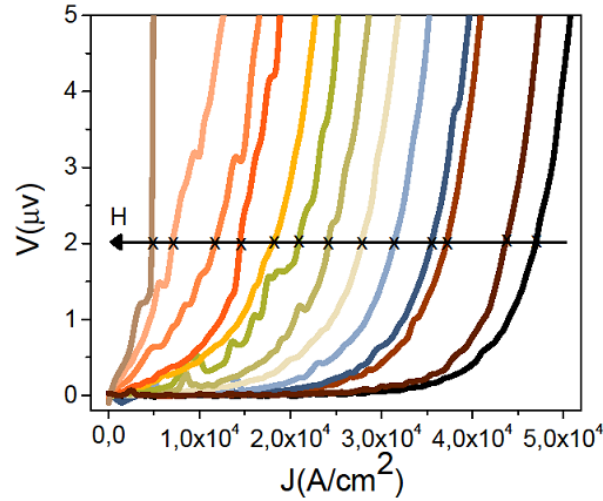


Figura 4.12: Voltaje Vs densidad de corriente medido en la muestra $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$ a $T=4\text{K}$ variando el campo desde 0-10 kOe con un paso de 0,5kOe entre 0-2 kOe y luego con un paso de 1 kOe 2-10 kOe.

Otra forma de estimar la densidad de corriente crítica es a partir de la parte irreversible de la magnetización usando el modelo de Bean (descrito en la sección 1.7) y la ecuación 1.12. En el trabajo asociado a este tema [87] se muestra la dependencia de corriente crítica J_c a $T=4.5 \text{ K}$ para la superred $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$, el rango de valores obtenido a partir de estas mediciones es de 10^7 A/cm^2 , mientras que los datos obtenidos por mediciones de transporte son del orden de 10^4 A/cm^2 , esta diferencia en los valores de J_c obtenidos podría deberse en parte a que la muestras no es la misma en ambas medidas, de hecho la muestra a la cual se midió transporte presenta propiedades menos atractivas, como se observó en las mediciones de T_c . Otra posible explicación a esta diferencia podría estar relacionada con un posible calentamiento en la muestra durante las mediciones de transporte, es decir los contactos podrían estar disipando, de manera que J_c en este caso sea menor debido a que en realidad se está midiendo a una temperatura mayor.

A partir de la figura 4.12, donde se grafica J-V a diferentes campos, se pudo determinar J_c (valor de J en el que las curvas J-V se interceptan con la línea negra horizontal, $V = 2\mu\text{Volt}$). Esta densidad de corriente crítica en función del campo para diferentes temperaturas se muestra en la figura 4.13.

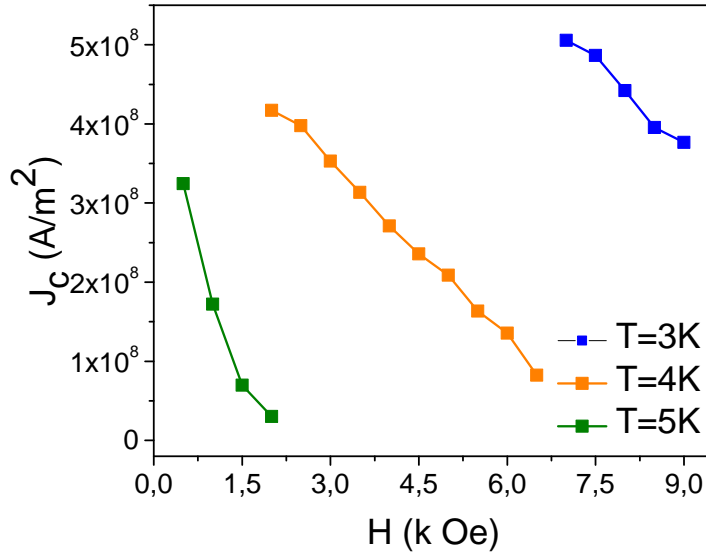


Figura 4.13: Corriente Crítica en función del campo medido en la muestra $(Nb_{30}/B_{30}) \times 3$ para $T = 3, 4$ y 5 K.

4.6. Irradiación de las superredes

Cuando se crece un compuesto de Boro con un material superconductor bien sea homogéneo o inhomogéneo y se irradia con un haz de neutrones, el boro reacciona con los neutrones (en particular el isótopo ^{10}B), liberando iones de litio y partículas α . El proceso de pérdida de energía de partículas cargadas induce la creación de una región cilíndrica “caliente” en estado normal a lo largo de su trayectoria en la película. La región circular que resulta de la intersección del cilindro con la superficie de la película superconductora es el punto caliente o “hot spot”, responsable de la reducción en el canal por el que la supercorriente fluye. El encogimiento del canal por el cual fluye la corriente genera un incremento en la densidad de corriente local J , la cual eventualmente excede la densidad de corriente crítica J_c con una consecuente transición superconductor-normal (S-N). Como consecuencia, una caída de voltaje que depende del valor de la resistencia normal del sistema, puede ser medida entre contactos de voltaje. La anterior es la forma de detectar neutrones descrita por Merlo en [21, 22], trabajo en el cual fabrican líneas de Nb y NbN con un recubrimiento de boro.

Teniendo en cuenta lo recién mencionado una medición fundamental a tener en cuenta si se desea fabricar un detector de neutrones es medir resistividad y corriente crítica mientras se irradia la muestra. Si bien nosotros no disponemos de las instalaciones para realizar estas mediciones *in situ*, un experimento que sí pudimos hacer fue irradiar una de las superredes de Nb/B con neutrones, para luego medir sus propiedades superconductoras y así comprobar si la muestra sufría un deterioro considerable en sus propiedades o no. Las irradiaciones se hicieron en el reactor RA6 ubicado dentro de

las instalaciones del Centro Atómico Bariloche. Para determinar con qué flujo de neutrones irradiar la muestra tuvimos en cuenta el trabajo de Miyajima y colaboradores [91], quienes fabricaron un detector de inductancia cinética basado en Nb con una capa de B y un circuito de flujo cuántico único (SFQ, por sus siglas en inglés). Ellos verificaron el funcionamiento de su dispositivo midiendo inductancia a una temperatura por debajo de T_c mientras irradiaban el detector con un haz pulsado de neutrones. El flujo de neutrones con el que trabajaron fue de $\approx 2,26 \times 10^4 \text{ neutrones/cm}^2/\text{s/pulso}$. Por lo que decidimos irradiar la muestra con un flujo de neutrones de $\approx 10^4 \text{ neutrones/cm}^2/\text{s}$ durante 1 hora.

Problemas durante el proceso de irradiación generaron que el flujo de neutrones fuera mayor al deseado. Luego de hacer una evaluación de espectros por cálculo numérico, escaleada por el resultado experimental, se determinó que la fluencia total de neutrones térmicos fue de $7,7 \times 10^{10} \text{ neutrones/cm}^2$ más un 10 % de incerteza y el flujo de neutrones térmicos fue de $2,53 \times 10^7 \text{ neutrones/cm}^2/\text{s}$, con 3 % de incerteza. Es decir la muestra fue irradiada con un flujo de neutrones tres órdenes de magnitud mayor al deseado.

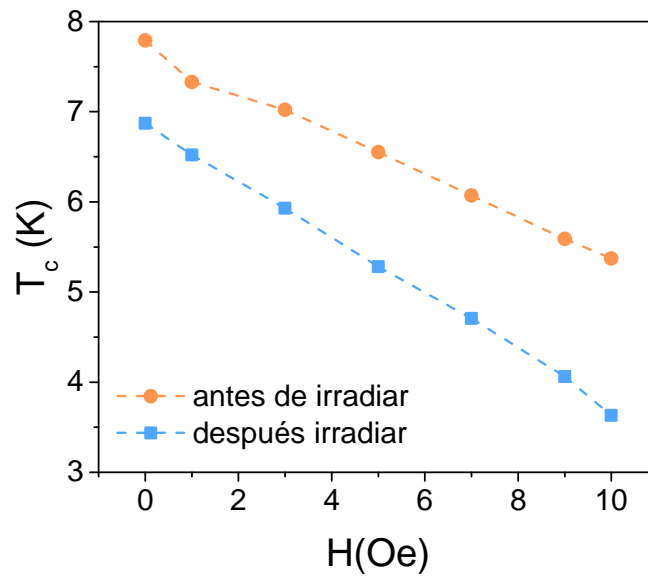


Figura 4.14: T_c de la muestra $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$ antes (círculos naranjas) y después de la irradiación con neutrones (cuadrados azules). A medida que aumenta el campo la diferencia en T_c aumenta

Para verificar el estado de la superred de Nb/B posterior a la irradiación se midió R vs. T a diferentes campos antes y después de la irradiación, en la figura 4.14 se muestra la T_c de las muestras a distintos campos en ambas situaciones. Es evidente que, a pesar de haber excedido un factor de orden 10^3 el flujo de neutrones, la muestra sigue presentando propiedades superconductoras. Sin embargo, la muestra presenta un deterioro, ya que la transición superconductora después de la exposición de neutrones ocurre en

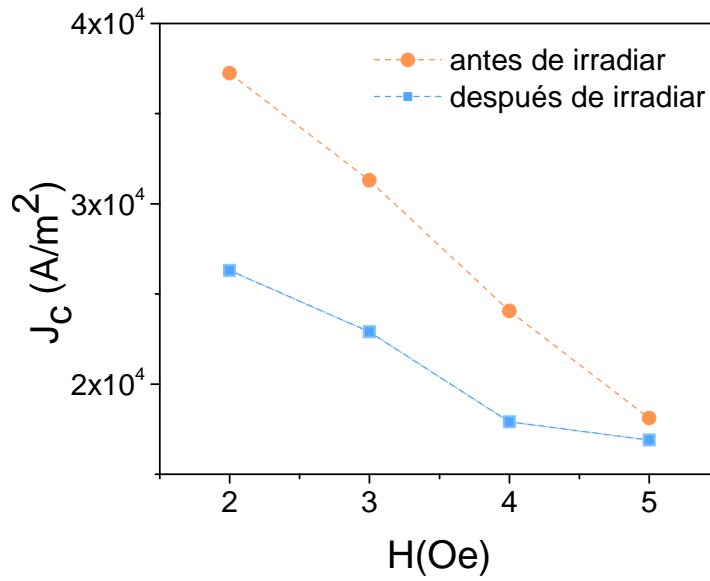


Figura 4.15: Densidad de corriente crítica en función del campo de la muestra $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$ antes (círculos naranjas) y después de la irradiación con neutrones (cuadrados azules) y a $T = 4$ K. A medida que aumenta el campo la diferencia en J_c disminuye.

todos los casos a temperaturas más bajas. La nueva temperatura de transición ocurre aproximadamente 1K por debajo de la T_c obtenida antes de irradiar. Esta diferencia en T_c aumenta a medida que se incrementa el campo, por lo que H_{c2} también se ve afectado

De igual forma se midió corriente crítica antes y después de la irradiación con neutrones, figura 4.15, observando un comportamiento similar. Para un voltaje fijo la muestra irradiada presenta una corriente crítica menor que antes de la irradiación. En este caso la diferencia entre las muestras antes y después de irradiar es menor a medida que se incrementa el campo.

A partir de lo observado podemos decir que, si bien las propiedades superconductoras como resistencia y corriente crítica de la superred $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$ se ven afectadas después de la irradiación, esto puede deberse a que el flujo de neutrones fue tres órdenes de magnitud mayor al reportado en bibliografía para verificar este tipo de sistemas. Si bien hacen falta más pruebas de irradiación de neutrones existen indicios claros de que las superredes de Nb/B toleran la irradiación, lo que las convierte en un sistema apto para su posible uso como detector de neutrones TES.

4.7. Conclusiones

Hemos estudiado un sistema de superredes de Nb/B como posible detectores de neutrones TES. En este capítulo, describimos el proceso de fabricación de superredes de Nb/B crecidas por sputtering y el análisis de la estructura cristalina, encontrando

que dichas superredes presentan un crecimiento texturado de las capas de Nb en la dirección (110). Como dato adicional se calculó el parámetro de red para todas las muestras obteniendo en todos los casos un valor cercano al de Nb bulk, $a = 3,3068 \text{ \AA}$ con una diferencia respecto a este del 0,4 %. Este cambio en el parámetro de red podría estar asociado a tensiones.

A partir de mediciones de rayos X a bajo ángulo se pudo calcular el período de modulación de la superred y el espesor total de la muestra encontrando que, el espesor de superred medido coincide con el esperado sólo para las muestras $(Nb_5/B_5)_{\times 10}$ y $(Nb_{15}/B_{15})_{\times 10}$. Adicionalmente se utilizó el formalismo recursivo Parrat para hacer una simulación de la reflectometría entre los planos, obteniendo como resultado que nuestra estimación de crecimiento para la muestra $(Nb_5/B_5)_{\times 10}$ y $(Nb_{15}/B_{15})_{\times 10}$ condice en gran medida con lo que obtenemos.

Respecto a las propiedades superconductoras podemos mencionar la evolución de T_c con el espesor de las películas de Nb para las superredes muestra que para un espesor de Nb dado todas las superredes presentan una T_c más alta que la de una película de Nb aislado del mismo espesor que cada capa. Además, la T_c de las superredes depende menos del espesor de Nb que las películas, encontrando superredes con propiedades superconductoras para espesores de hasta 5nm, $d_{Nb} = 5nm$. Desde el punto de vista superconductor, las superredes se comportan como un apilamiento de películas de Nb independientes con espesor d_{Nb} . Teniendo en cuenta que los valores de T_c se obtuvieron por transporte y magnetización encontrando valores similares en ambos casos, podemos considerar este como un indicio de la calidad y homogeneidad de las muestras.

A partir de la parte irreversible de los loops de magnetización y de las mediciones I-V para un valor constante de voltaje, se determinó J_c encontrando que, como se espera a medida que se aumenta el campo o la temperatura, la corriente crítica disminuye. Vale la pena aclarar que los valores obtenidos por ambos métodos no coinciden, la diferencia es 3 órdenes de magnitud superior en las medidas de magnetización que en las de transporte, esto podría estar relacionado con el hecho de que las muestras en ambas mediciones no es la misma y que la usada para medir transporte presenta propiedades menos atractivas.

Para verificar si el sistema de superredes Nb/B es un buen candidato a detector de borde de transición de neutrones se decidió realizar una prueba de irradiación en una de las muestras $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$. Las dosis usuales para este tipo de pruebas están en el rango de $10^4 \text{ neutrones/cm}^2/\text{s}$ que fue la dosis solicitada. Debido a problemas técnicos en el haz utilizado en el RA6, la dosis que se aplicó a la muestra fue de $2,5310^7 \text{ neutrones/cm}^2/\text{s}$, tres ordenes de magnitud superior. A pesar de esta enorme dosis, las muestras siguieron mostrando superconductividad después de la irradiación, aunque con un cierto deterioro de las propiedades tales como una reducción de, T_c y J_c .

Este resultado es muy alentador, ya que indica que el sistema heterogeneo de la superred Nb/B soporta dosis superiores a las usualmente medidas con deterioro de propiedades superconductoras aceptables, combinado ello a una facilidad de crecimiento muy superior a la de compuestos superconductores que incluyen B, tales como el MgB_2 .

En conclusión, encontramos que el sistema de superredes Nb/B es un muy buen candidato para construir un detector de borde de transición de neutrones, combinando un elemento superconductor con B y manteniendo una transición superconductora aún para dosis tres ordenes de magnitud superiores a las necesarias para un dosímetro. Restaría abordar las pruebas de fabricación de un sensor por litografía para generar el detector por borde transición y caracterizar los pulsos de voltaje generados bajo irradiación de neutrones.

Capítulo 5

Conclusiones

Durante esta tesis se trabajó en temas relacionados a las propiedades físicas de películas delgadas superconductoras. Los conceptos utilizados en el análisis de los resultados experimentales son comunes, aunque se haya trabajado en dos áreas diferentes. Por una parte, y desde un punto de vista de investigación básica, se estudiaron las propiedades de una película superconductora al cual se le generó una red de centros de anclaje artificialmente diseñada, incluyendo un grado de desorden controlado, al menos hasta un cierto punto. Este es un tema interesante dado que no se registra en la literatura un estudio sistemático completo del efecto del desorden en el anclaje debido a la conmensuración de esta red con la de vórtices superconductores. Por otro lado, y desde un punto de vista más relacionado a las posibles aplicaciones, se estudió la factibilidad de construir un detector de neutrones por borde de transición en base a superredes de Nb/B. En este caso, el Boro no es parte de la estructura del material intrínsecamente superconductor, pero está en íntimo contacto a nivel microscópico.

A continuación se presentarán los resultados más destacados de los dos temas.

En el área del efecto del desorden en la red de centros de anclaje periódica, se estudió el efecto del desorden en una red de centros de anclaje sobre las propiedades de la red de vórtices superconductores. Para ello crecimos por sputtering películas delgadas de Nb sobre membranas porosas de alúmina cuya red de poros genera centros de anclaje de vórtices. Seis membranas porosas fueron crecidas por el Dr. Carlos Montón y su equipo de trabajo mediante el método de doble anodizado de aluminio, siendo el tiempo de primera anodización, el parámetro variable y el que determina el grado de orden de los poros en la red.

Con el fin de determinar el grado de orden de las redes crecidas, se tomaron micrografías de la superficie mediante SEM. Dichas micrografías fueron analizadas, lo que nos permitió determinar que la muestra crecida con menor tiempo de anodización, M6min carece de orden. En cuanto a las muestras crecidas con tiempo de anodización ≥ 15 minutos se encontró que los poros de la membrana presentan una estructura

policristalina, donde un mayor tiempo de anodización significa una estructura con granos y poros más grandes y una menor dispersión en el número de primeros vecinos y diámetro de poros.

A partir de la función de distribución de pares pudimos determinar que un mayor tiempo de anodización significa un orden de mayor alcance. Además se encontró que las estructuras de poros presentan un orden orientacional de corto alcance, incluso las más ordenadas, debido a la existencia de granos en la red de poros. Considerando lo anterior podemos afirmar que aumentar el tiempo de primera anodización durante la fabricación conlleva a una red de poros con características más similares a una red policristalina, de granos cada uno de ellos con estructura hexagonal.

En cuanto a las propiedades superconductoras del film de Nb crecido sobre la estructura porosa observamos que la temperatura de transición se encuentra en un rango entre 7.5 - 8 K. Si bien estos valores son menores que los del Nb bulk, son comprendidos por la dispersión observada en la sensibilidad de la T_c del Nb a impurezas.

Aunque se determinó que el orden del arreglo de centros de anclaje es restringido a un rango de corto alcance se observaron efectos de conmensuración entre la red de vórtices y la red de centros de anclaje. Esto se evidenció a través de máximos en la diferencia entre las ramas ascendente y descendente de la curva de histéresis de magnetización (mayor corriente crítica) al estar anclada en forma energéticamente mas favorable la red de vórtices. Los resultados obtenidos muestran conmensuración entre la red de vórtices y las redes de centros de anclaje con algún cierto grado de orden (exceptuando M6min) a campos cercanos a $H \sim 2200$ Oe. Un pico más definido e intenso se observa sólo en las muestras con mayor tiempo de primera anodización (M240min y M480min). En cuanto a la periodicidad de estos picos, podemos notar que sólo las dos muestras con mayor tiempo de primera anodización (M240min y M480min) presentan un pico en el campo correspondiente al tercer campo de conmensuración. Es decir, si analizamos la correlación entre el grado de orden de la estructura de poros y los efectos de conmensuración tenemos que una muestra más desordenada conlleva a una menor conmensuración entre ambas redes. Debido al tamaño nanoscópico de los centros de anclaje, el anclaje es de un vórtice por poro.

Dada la topografía de nuestras muestras otro efecto que pudimos observar es el efecto Little-Parks, característico de sistemas similares en el cual la película superconductora presenta una modulación debido la topografía del subtrato [1, 2, 14]. Se midió T_c a distintos campos para tres de las muestras, M6min, M60min y M480min, observando oscilaciones en T_c para las dos muestras con mayor tiempo de primera anodización con períodos de ~ 2200 Oe, es decir el radio por el cual circulan las corriente es similar al área de la celda unidad de la red de defectos.

Analizando los resultados obtenidos de las mediciones de relajación magnética pudimos notar que nuestros datos pueden ser descriptos con la teoría de relajación de

Anderson-Kim. A partir de esta se calculó la energía de anclaje, la cual luego fue también estimada en base a los parámetros microscópicos, obteniendo valores similares en ambos casos. Un aspecto que nos llamó la atención fue el hecho que la energía de anclaje tiene una correlación no monótona con el grado de orden de nuestras redes de centros de anclaje, encontrando un máximo para un grado de desorden intermedio. Este comportamiento podría ser explicado cualitativamente en el siguiente escenario. Para el caso de las redes más desordenadas, debido a que estas presentan sólo orden de muy corto alcance, el anclaje inducido es equivalente al anclaje intrínseco por defectos de la misma película de Nb. Por lo tanto, no contribuye significativamente en el campo de conmensuración. En el otro extremo, para las redes más ordenadas, si bien el orden de los poros es hexagonal dentro de cada grano, los granos entre sí están orientados en distintas direcciones. Esto significa que para que la red de vórtices se acomode a esta configuración debería, a su vez, tener una estructura policristalina, lo que implicaría un alto costo de energía elástica para la red de vórtices. Lo que probablemente está sucediendo en este tipo de redes es que la conmensuración se produce sólo en unos pocos granos, reduciendo la energía de anclaje efectiva promedio. En un rango intermedio de desorden, la red de vórtices se podría acomodar mejor la conmensuración, pagando algún costo de energía elástica para acomodarse a mayor cantidad de granos de la red de centros de anclaje, aumentando así la energía de anclaje promedio por vórtice.

En conclusión, se ha encontrado un claro efecto del desorden en la red de defectos sobre el anclaje de la red de vórtices. Si bien la energía de anclaje aumenta a medida que el desorden disminuye para $H = H_\phi$, hecho que se espera, en el caso de redes de poros muy ordenadas la energía de anclaje vuelve a disminuir. Creemos que esto se debe a que estas redes presentan una estructura ordenada pero policristalina, lo cual genera una competencia entre la energía de anclaje de los vórtices y la energía elástica de deformación de la red. Esta competencia llevaría a que, aunque el orden interno de los granos aumente, la red de vórtices no pueda aprovechar este orden. A futuro sería imprescindible confirmar este escenario a través de cálculos y/o simulaciones.

En lo referente a las superredes de Nb/B como posible detectores de neutrones, investigamos el sistema de superredes de Nb/B como posible detector de neutrones tipo TES (Sensores de neutrones por borde de transición), estas superredes de Nb/B fueron crecidas por sputtering.

Mediante difracción de rayos X se hizo un análisis de la estructura cristalina, encontrando que dichas superredes presentan un crecimiento texturado de las capas de Nb en la dirección (110). Como dato adicional se calculó el parámetro de red para todas las muestras obteniendo en todos los casos un valor cercano al de Nb bulk, $a = 3,3068\text{\AA}$ con una diferencia respecto a este del 0,08 %. Este cambio en el parámetro de red podría estar asociado a tensiones.

A partir de mediciones de reflectometría se pudo calcular el período de modulación

de la superred y el espesor total de la muestra encontrando que en las muestras con mayor espesor de boro el espesor de superred medido no coincide con el nominal. Este hecho también fue observado en las medidas de TEM.

Respecto a las propiedades superconductoras podemos mencionar que la evolución de T_c con el espesor del film de Nb para las superredes muestra que para un espesor de Nb dado todas las superredes presentan una T_c más alta que la de un film de Nb aislado del mismo espesor que la capa. Además, la T_c de las superredes depende menos del espesor de Nb que las películas, encontrando superredes con propiedades superconductoras para espesores de hasta 5nm, $d_{Nb} = 5nm$. Esto puede ser debido a que la capa de B actúa como una capa protectora que previene la formación de óxido en la superficie del Nb. Desde el punto de vista superconductor, las superredes se comportan como un apilamiento de películas de Nb independientes con espesor d_{Nb} .

A partir de la parte irreversible de los loops de magnetización y mediciones de curvas IV para un valor constante de voltaje se determinó la densidad de corriente crítica encontrando que, como se espera a medida que se aumenta el campo o la temperatura, la corriente crítica disminuye. Vale la pena aclarar que los valores obtenidos por ambos métodos no coinciden, la diferencia es 3 órdenes de magnitud superior en las medidas de magnetización que en las de transporte, esto podría estar relacionado con el hecho de que las muestras en ambas mediciones no son las mismas y que la usada para medir transporte presenta propiedades menos atractivas.

Con el fin de verificar si el sistema de superredes Nb/B es un buen candidato a detector de borde de transición de neutrones se decidió realizar una prueba de irradiación en una de las muestras $(Nb_{30}/B_{30})_{\times 3}$. Las dosis usuales para este tipo de pruebas están en el rango de $10^4 neutrones/cm^2/s$ por lo que decidimos irradiar con un flujo de este orden. Debido a problemas técnicos en el haz utilizado en el RA6, la dosis que se aplicó a la muestra fue de $2,5310^7 neutrones/cm^2/s$, tres ordenes de magnitud superior. A pesar de esta enorme dosis, las muestras siguieron mostrando superconductividad después de la irradiación, aunque con un cierto deterioro de las propiedades tales como una reducción de T_c y J_c .

Este resultado es muy alentador, ya que indica que el sistema heterogéneo de la superred Nb/B soporta dosis superiores a las usualmente medidas con deterioro de propiedades superconductoras aceptables. Si además, consideramos la facilidad de crecimiento muy superior a la de compuestos superconductores que incluyen B, tales como el MgB_2 , podemos concluir que el sistema de superredes Nb/B es un muy buen candidato para construir un detector de borde de transición de neutrones. En el futuro sería interesante abordar las pruebas de fabricación del sensor por litografía para generar el detector por borde transición y caracterizar los pulsos de voltaje generados bajo irradiación de neutrones.

Apéndice A

Fabricación y transferencia de membrana porosa AAO

Para fabricar una red de puntos a escala nanométrica en una área grande nuestra primera opción fue usar la técnica de litografía electrónica, sin embargo, debido a ciertos inconvenientes con el equipo SEM decidimos optar por la técnica descrita en 1995 por Masuda [55] en la cual se hace un doble anodizado a un film de aluminio para obtener una red de poros o membrana de aluminio anodizado oxido-asistido (AAO).

La fabricación y transferencia de las membranas de aluminio anodizado utilizadas en esta tesis, estuvo a cargo del Dr. Carlos Montón y su grupo de trabajo en el laboratorio de investigación nanotecnológica de la Universidad de San Antonio Texas (UTSA)

Tal y como se describe en la referencia [56], se parte de una lámina de aluminio (99,99%) de 200 μm . Antes de la anodización, la lámina de aluminio fue sonicada por 5 minutos en acetona y 5 minutos en metanol para remover cualquier contaminante de la superficie. Luego se realizó un electropulido a 8V en una solución 3:1 de etanol (C_2H_5O)-ácido perclórico ($HClO_4$) durante 3 minutos a 1°C. La primera anodización se realizó a voltaje constante (40V) en una solución de ácido oxálico a 1°C. Como resultado se obtuvo una alumina porosa (AAO) en la superficie que es obtenida en parte por la anodización y en parte por la solución ácida, ver paso (c) de la figura A.1. Esta alumina porosa se remueve usando una mezcla de ácido fosfórico y ácido crómico a 60°C por 14 horas. Una vez removida esta alumina porosa de la superficie se obtiene un patrón texturado cóncavo de aluminio anodizado. Este aluminio texturado es nuevamente anodizado por 5 minutos en condiciones idénticas a las de la primera anodización. En cada cóncavo que se formó en la primera anodización se nuclean los hoyuelos, es decir estos sitios cóncavos guían el crecimiento de los poros columnares. Las dimensiones de la estructura de poro de aluminio anodizado depende de las condiciones del anodizado y ataque químico.

Como lo que desea obtener es una membrana porosa de aluminio con orificios pa-

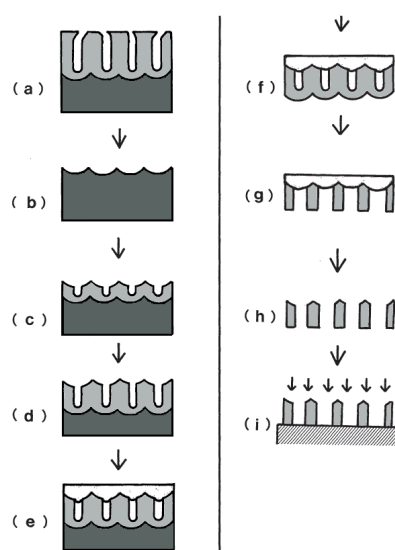


Figura A.1: Diagrama esquemático de la fabricación de membrana porosa. a) aluminio poroso después de la primera anodización. b) remoción de la capa de aluminio poroso. c) patrón texturado donde se formaran los huecos en la segunda anodización. d) alumina porosa después de la segunda anodización. e) cubrimiento con capa protectora. f) remoción de capa de Aluminio. g) remoción de la capa de barrera. h) remoción capa protectora. i) transferencia de membrana porosa a sustrato de Si.

santes se procede a eliminar el aluminio que se encuentra en la parte inferior de la barrera (paso f de la figura A.1), luego eliminar la barrera (paso g) y finalmente transferir la membrana al sustrato. Antes de realizar todo este procedimiento es necesario proteger la membrana utilizando una bicapa de recubrimiento hecha de una mezcla de fotoresina (S1813 Shipley Microposit) y polymethylmethacrylate (PMMA A11 Micro-Chem). La primera provee protección química a las paredes de los poros y la segunda confiere fuerza mecánica a la membrana AAO.

Cuando se tiene la membrana AAO cubierta por la bicapa de los dos polimeros se procede al comido químico para eliminar el aluminio de la parte inferior de la barrera. La solución de comido que se utilizó fue una mezcla de cloruro de cobre y ácido clorhídrico ($13.6g\ CuCl_2 \cdot 2H_2O + 100ml\ HCl + 400ml\ H_2O$). Este proceso se realizó a temperatura ambiente durante 20 minutos. Durante el comido, la capa protectora mantiene la membrana AAO flotando en la superficie de la solución exponiendo sólo la parte inferior de la lámina de aluminio, liberando así la membrana AAO de la lámina de aluminio.

Una vez que se disolvió la lámina de aluminio de la parte inferior de la barrera, procedieron a desaparecer la capa de barrera y abrir los poros paso (f) figura A.1. Para esto, primero se sumerge la membrana AAO aún con la capa protectora en agua

desionizada y luego realizaron el comido de la barrera en una solución de ácido fosfórico (5 %) en peso, a temperatura ambiente, durante una hora. Una vez terminado el comido se sumerge nuevamente la membrana AAO en agua desionizada, quedando así lista para transferir.

Para transferir la membrana, se sumerge el substrato sobre el cual se desea depositar la membrana (silicio 100) y la capa protectora que contiene la membrana AAO en agua desionizada y se ajusta la posición de la capa potectora para que quede encima del substrato. Finalmente para remover la capa protectora se deja secar la muestra por 30 minutos y luego se disuelve la capa protectora con acetona.

Bibliografia

- [1] Crabtree, G., *et al.* *Physical C.*, **387**, 49, 2003.
- [2] Kwok, W.-K., *et al.* *Physica C.*, **412**, 347, 2004.
- [3] Welp, U., *et al.* *Physical Review B*, **71(1)**, 014505, 2005.
- [4] Helfand, Werthamer. *Physical Review*, **147**, 288, 1966.
- [5] Martin, J., *et al.* *Journal of Applied Physics*, **84**, 411, 1998.
- [6] Martin, J., *et al.* *Physical Review B*, **62**, 9110, 2000.
- [7] Stoll, O., *et al.* *Physical Review B*, **65**, 104518, 2002.
- [8] Jaccard, Y., *et al.* *Physical Review B*, **58**, 8232, 1998.
- [9] Villegas, J., *et al.* *Physical Review Letters*, **97(2)**, 027002, 2006.
- [10] Silhanek, A., *et al.* *Applied physics letters*, **89(15)**, 152507, 2006.
- [11] Misko, V., *et al.* *Physical Review Letters*, **95(17)**, 177007, 2005.
- [12] Kemmler, M., *et al.* *Physical Review Letters*, **97**, 147003, 2006.
- [13] Misko, V. R., *et al.* *Physical Review B*, **74**, 024522, 2006.
- [14] Eisenmenger, J., *et al.* *Physical Review B*, **75**, 144514, 2007.
- [15] Ramirez, R., *et al.* *Physical Review B*, **30**, 6208, 1984.
- [16] Korda, P. T., *et al.* *Physical Review Letters*, **89**, 128301, 2002.
- [17] Giamarchi, T., Le Doussal, P. *Physical Review Letters*, **76**, 3408, 1996.
- [18] Trezza, M., *et al.* *Superconductor Science and Technology*, **26(3)**, 035001, 2013.
- [19] Chen, L., *et al.* *Physical C*, **314**, 228, 1999.
- [20] Rosen, Y., *et al.* *Physical Review B*, **82**, 014509, 2010.
- [21] Merlo, V. *Instruments*, **2**, 2018.
- [22] Merlo, V., *et al.* *Journal of Physics D: Applied Physics*, **50(4)**, 45, 2016.
- [23] Bentley, G. A., Mason, S. A. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series B, Biological Sciences*, **290(1043)**, 505, 1980.
- [24] Nagamatsu, J., *et al.* *Nature*, **410**, 63, 2001.

- [25] Onnes, H. K. *Leiden Comm. 120b, 122b*, 1911.
- [26] Meissner, W., Ochsenfeld, R. *Naturwissenschaften*, **21**, 787, 1933.
- [27] Gorter, C., Casimir, H. *Physica*, **1**, 306, 1934.
- [28] Taylor, P. L., Heinonen, O. *Superconductivity*, 232. Cambridge University Press, 2002.
- [29] Tinkham, M. *Introduction to superconductivity*. McGraw-Hill, 2 ed^{ón}., 1996.
- [30] Ginzburg, V., Landau, L. *Fiz*, **20**, 1064, 1950.
- [31] Saint-James, D., Gennes, P. d. En *Simple Views On Condensed Matter*, 39. World Scientific, 2003.
- [32] Abrikosov, A. *JETP*, **5**, 4, 1957.
- [33] Kleiner, W., et al. *Physical Review*, **133**, A1226, 1964.
- [34] Goodman, B. B. *Reports on Progress in Physics*, **29**, 445, 1966.
- [35] Essmann, U., Träuble, H. *Physics letters A*, **24**, 526, 1967.
- [36] Civale, L., et al. *Physical Review Letters*, **67**, 648, 1991.
- [37] Van der Beek, C., et al. *Physical Review Letters*, **74**, 1214, 1995.
- [38] Montero, M., et al. *EPL (Europhysics Letters)*, **63**, 118, 2003.
- [39] Baert, M., et al. *Physical Review Letters*, **74**, 3269, 1995.
- [40] Fossheim, K., Sudboe, A. *Superconductivity: Physics and Applications*. John Wiley and Sons, 2 ed^{ón}., 2004.
- [41] Gubin, A., et al. *Physical Review B*, **72(6)**, 064503, 2005.
- [42] Asada, Y., Nose, H. *Journal of the Physical Society of Japan*, **26(2)**, 347, 1969.
- [43] Montón, C. Tesis Doctoral, Instituto Balseiro, 2008.
- [44] En Wasa, K., et al., eds., *Handbook of Sputtering Technology (Second Edition)*. William Andrew Publishing, Oxford, second edition ed^{ón}., 2012.
- [45] Ale, M. Tesis Doctoral, Instituto Balseiro, 2019.
- [46] Chopra, K. L. *Thin film phenomena*. McGraw Hill, 1969.
- [47] technical specifications, E. *PANalytical*, 24.

- [48] **et al, Q. C.** *Procedimiento para la medición de reflectometrías de rayos x empleando el difractómetro empyrean Inf. Téc.*, 2018.
- [49] **Holy, V., et al.** *High-resolution X-ray scattering from thin films and multilayers.* Springer, 1999.
- [50] **Lyman, C. E., et al.** *Scanning electron microscopy, X-ray microanalysis, and analytical electron microscopy: a laboratory workbook.* Springer Science & Business Media, 2012.
- [51] **Williams, D. B., Carter, C. B.** En *Transmission Electron Microscopy*, 23–38. Springer, 2009.
- [52] **Bruker.** *NanoScope Analysis 1.50 User Manual.*
- [53] <http://sica.cab.cnea.gov.ar/resonancias/equipaminetoycapacidades/afm>.
- [54] **Clarke, D., et al.** *Plating*, **54**, 1342, 1967.
- [55] **Masuda, H., Nishio, K.** En *Self-organized nanoscale materials*, 296. Springer, 2006.
- [56] **Guiliani, J., et al.** *Nanotechnology*, **29**, 075301, 2018.
- [57] **Frerichs, R., Kircher, C.** *Journal of Applied Physics*, **34**, 3541, 1963.
- [58] **Little, W., Parks, R.** *Physical Review Letters*, **9**, 9, 1962.
- [59] **Valmianski, I., et al.** *Review of Scientific Instruments*, **85**, 033701, 2014.
- [60] **Lee, D.-T., Schachter, B. J.** *International Journal of Computer & Information Sciences*, **9**, 219, 1980.
- [61] **Halperin, et al.** *Physical Review Letters*, **41**, 121, 1978.
- [62] **Menghini, M.** Tesis Doctoral, Instituto Balseiro, 2003.
- [63] **Fasano, Y.** Tesis Doctoral, Instituto Balseiro, 2003.
- [64] **Buzdin, A. I.** *Physical B.*, **47**, 11416, 1993.
- [65] **Dew-Hughes, D.** *Low temperature physics*, **27**, 713, 2001.
- [66] **Campbell, A., Evetts, J.** *Advances in Physics*, **21**, 199, 1972.
- [67] **Anderson, P. W.** *Physical Review Letters*, **9(7)**, 309, 1962.
- [68] **Kim, Y., et al.** *Physical Review Letters*, **9**, 306, 1962.

- [69] Yeshurun, Y., *et al.* *Review Mod. Physica*, **68**, 911–949, 1996.
- [70] Blatter, G., Geshkenbein, V. B. *The Physics of Superconductors, Volume 1: Conventional and High-Tc Superconductors*. Springer-Verlag, by k. bennemann and j. ketterson ed^{ón}., 2003.
- [71] Feigel'Man, M., *et al.* *Physical Review Letters*, **63(20)**, 2303, 1989.
- [72] Guimpel, J. Tesis Doctoral, Instituto Balseiro, 1987.
- [73] Gor'kov, L. P. *Soviet Physical JETP*, **9**, 1364, 1959.
- [74] Creusot, A., *et al.* *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **662**, S106, 2012.
- [75] Capelle, K., *et al.* *Astroparticle Physics*, **8**, 321, 1998.
- [76] Ghribi, A., *et al.* *Journal of Low Temperature Physics*, **176**, 698, 2014.
- [77] Yadav, A. P., *et al.* *The Astrophysical Journal*, **664**, 680, 2007.
- [78] T. Ishida, M. N., D. Fujiwara. *Journal of Korean Physical Society*, **48**, 1026, 2006.
- [79] Kang, W., *et al.* *Science*, **292**, 1521, 2001.
- [80] for Diffraction Data, J.-I. C. *Power Diffraction File card no. 35-0789*, 2000.
- [81] Pietsch, V., T., B. *High-Resolution X-ray scattering From Thin Films and Multilayers*. Springer-Verlag, 1999.
- [82] Miceli, P., *et al.* *Applied physics letters*, **48**, 24, 1986.
- [83] Sánchez, J. C. R. Tesis Doctoral, Instituto Balseiro, 2010.
- [84] Kiessig, H. *Ann. Phys*, **402**, 769, 1931.
- [85] Huan, F. Tesis Doctoral, University of Alabama, 2005.
- [86] *Handbook Parrat32 versión 1.5*.
- [87] Franco, D., *et al.* *Physica C*, **531**, 93, 2016.
- [88] Gennes, P. D. *Review Mod. Physica.*, **36**, 225, 1964.
- [89] Yoshii, K., *et al.* *Physical Review B*, **52**, 13570, 1995.
- [90] Grinblat, G. Tesis Doctoral, Instituto Balseiro, 2010.

-
- [91] **Miyajima, S.**, *et al.* *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **842**, 71, 2017.

Publicación asociada al trabajo de doctorado

1. *Characterization of the Nb-B superlattice system.* D.G. Franco, A. Sarmiento-Chavez, N. Schenone A.E. Llacsahuanga Alcca, M. Gómez Berisso, Y. Fasano and J. Guimpel. *Physica C.*, **531**, 93 (2016).

Agradecimientos

En primer lugar quiero darle muchas gracias a Julio por todo lo que me enseñó, por su paciencia y apoyo brindado.

Al CONICET y CNEA por la beca y el equipamiento para desarrollar este trabajo de doctorado.

Al grupo de nanotecnología en UTSA por facilitarme las membranas porosas. En especial al Dr. Montón por las discusiones y su apoyo.

A los integrantes del laboratorio de Bajas Temperaturas. En especial A Karim y Leandro por capacitarme para trabajar en la sala limpia. A Diego por enseñarme a crecer muestras y medir resistividad. A Yanina por ayudarme a caracterizar las membranas. A Nestor por darme una mano con el SQUID. A Manu y Sergio por ayudarme a resolver más de una duda y a Pablo quién tuvo mucha paciencia como revisor.

A los técnicos Gerardo, Nacho, Julián, Luciano, Rodo y Santi por ayudarme con problemas técnicos dentro y fuera del laboratorio.

A Martín, Luis Aragón y Simón por discutir conmigo los resultados del AFM.

A Paula, Bernardo, Beto y Juan por la ayuda con el SEM y el Panalytical.

A mis compañeros de pajarera Gonzalo, Lucio, Lourdes, Andrés, Henry, . . . por la buena onda.

A los amigos quienes fueron para mí un soporte importante en esta etapa. Luci, Belén, Isaías, Mili, Sergio, Diana, Vane, Maury, Pablo, Lis, Gastón, Alan y Mary por los momentos compartidos y por hacerme sentir como en casa.

A la gente de resonancia por la camaradería los viernes en el almuerzo.

A mis dos amigas Vicky y Jazmín, con quienes tuve la suerte de compartir este camino de aprendizaje. Son tantas las cosas que agradecerles que no puedo ponerme a enumerar pero las resumo en gracias por estar siempre.

A mi familia, quienes desde siempre me han apoyado en toda tarea que emprendiera y han sabido comprender mi ausencia en casa todos estos años. Gracias por ser mi ejemplo y motivación en todos los desafíos que he emprendido.

A Jesús por haberse convertido en este tiempo en mi sostén incondicional, por su amor, comprensión y sobre todo por todos los fines de semana que se levanto temprano para traerme al laboratorio a medir.

